

Kombination eines Gebäudekondensators mit H₂-Rekombinatorelementen in Leichtwasserreaktoren

Stephan Kelm

Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Energieforschung (IEF)
Sicherheitsforschung und Reaktortechnik (IEF-6)

Kombination eines Gebäudekondensators mit H₂-Rekombinatorelementen in Leichtwasserreaktoren

Stephan Kelm

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 56

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-611-8

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten
sind im Internet über <<http://dnb.d-nb.de>> abrufbar.

Herausgeber und Vertrieb: Forschungszentrum Jülich GmbH
Zentralbibliothek, Verlag
D-52425 Jülich
Telefon (02461) 61-5368 · Telefax (02461) 61-6103
e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de
Internet: <http://www.fz-juelich.de/zb>

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2010

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment Band / Volume 56

D 82 (Diss., RWTH Aachen, University, 2010)

ISSN 1866-1793
ISBN 978-3-89336-611-8

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL)
unter <http://www.fz-juelich.de/zb/juwel>

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

Kombination eines Gebäudekondensators mit H₂-Rekombinatorelementen in Leichtwasserreaktoren

von

Stephan Kelm

Kurzfassung:

In innovativen Reaktorkonzepten der Generationen III und III+ werden passive Sicherheitssysteme eingesetzt, um auch im Verlauf eines Störfalls die Integrität der physikalischen Barrieren gegen die Freisetzung von Spaltprodukten zu gewährleisten. Der Sicherheitsbehälter (SB) stellt hierbei die letzte Barriere zur Umwelt dar. Seine frühzeitige gefilterte Druckentlastung aufgrund eines unzulässigen Druckaufbaus muss daher ausgeschlossen bzw. zumindest verzögert werden. Für diesen Zweck sind in modernen SB-Konzepten u.a. Wärmetauscher vorgesehen, die den im Störfall freigesetzten Dampf kondensieren und somit Druck abbauen.

Vorangegangene experimentelle Untersuchungen dieses Konzepts zeigen einen signifikanten Einbruch der Kondensatorleistung für auslegungsüberschreitende Störfallsszenarien mit Wasserstofffreisetzung in den SB. Um den hiermit verbundenen erheblichen Druckanstieg im SB zu begrenzen, wird im Rahmen dieser Arbeit ein innovatives Kondensatorkonzept mit integrierten Katalysatorelementen zur Rekombination des Wasserstoffs mit dem vorhandenen Luftsauerstoff vorgeschlagen und untersucht.

Mit den im Rahmen der Arbeit entwickelten CFD (Computational Fluid Dynamics) Modellen wird die Grundlage zur numerischen Beschreibung des komplexen Zusammenspiels zwischen katalytischer Reaktion, Wandkondensation und auftriebsgetriebener Strömungen in einem innovativen, kombinierten Katalysator- und Kondensatorrohrbündel geschaffen. Die hochauflösende CFD-Simulation ergibt erstmals einen detaillierten Einblick in die Strömungs- und Transportvorgänge innerhalb eines solchen Bündels, bestätigt die Wirksamkeit der Konzeptidee und dient auf diese Weise der Erhöhung der Sicherheitsreserven künftiger Reaktorsysteme.

Combination of a Building Condenser with H₂-Recombiner Elements in Light Water Reactors

by

Stephan Kelm

Abstract:

In innovative reactor concepts of generation III and III+, passive safety systems are applied in order to ensure the integrity of the physical barriers against the release of fission products to the environment in the course of accidents. The containment represents the final barrier. An early filtered release due to an unacceptable pressure increase therefore has to be excluded or at least delayed. For this purpose, building condensers are envisaged in modern containment concepts in order to condense the steam released during an accident and thus reduce pressure.

Experimental investigations on this concept conducted at various facilities showed a significant trip of the condenser effectivity in case of beyond-design-basis accidents with hydrogen release into the containment. In order to reduce the related significant pressure rise, an innovative condenser concept with integrated catalyst elements for recombining the hydrogen with the atmospheric oxygen present is proposed and investigated.

The CFD (computational fluid dynamics) models developed in the present work form the basis for numerical simulation of the complex interaction between catalytic reaction, wall condensation and buoyancy-driven flow inside an innovative, combined catalyst-condenser bundle. The high-resolution CFD simulation allows for the first time detailed insight into the flow and transport phenomena inside the tube bundle, verifies the conceptual idea and thus serves for the enhancement of safety margins of future reactor systems.

Inhaltsverzeichnis

Nomenklatur.....	iii
1 Einleitung.....	1
2 Stand der Technik	5
2.1 Reaktorkonzepte mit passiven Sicherheitssystemen	5
2.2 Gebäudekondensator.....	8
2.2.1 Funktionsprinzip.....	8
2.2.2 Bisherige Arbeiten	12
2.3 Wasserstoffgegenmaßnahmen	17
3 Theoretische Grundlagen.....	21
3.1 Turbulente reaktive Strömungen	21
3.2 Heterogene Katalyse.....	25
3.3 Wandkondensation	28
4 Experimentelle Daten.....	31
4.1 Versuche zur Wandkondensation	31
4.1.1 Beschreibung der Versuchsanlage CONAN	31
4.1.2 CONAN-Daten zur Wandkondensation in Anwesenheit von Inertgas.....	33
4.2 Versuche zur Reaktionskinetik.....	35
4.2.1 Beschreibung der Versuchsanlage REKO-3.....	35
4.2.2 REKO-3-Datenbank für plattenförmige Katalysatorelemente	38
4.2.3 REKO-3-Versuche am zylindrischen Katalysatorelement.....	40
5 Modellentwicklung und –validierung	45
5.1 Simulation turbulenter Strömungen.....	45
5.2 Modellierung der heterogenen katalytischen Reaktion.....	53
5.2.1 Implementierung des Reaktionsmodells	53
5.2.2 Validierung der grundlegenden Reaktionskinetik.....	57
5.2.3 Reaktionskinetik am umströmten Zylinder	65

5.3	Modellierung der Wandkondensation in Anwesenheit nichtkondensierbarer Gase	68
5.3.1	Implementierung des Kondensationsmodells	68
5.3.2	Validierung des Kondensationsmodells	71
5.4	Fehlerdiskussion	78
5.4.1	Numerische Fehler	78
5.4.2	Modellfehler	82
6	Kombiniertes Katalysator/Kondensator-System	85
6.1	Konzeptidee	85
6.2	Konzeptentwurf	85
6.3	Numerische Betrachtung	88
6.3.1	Modellaufbau	88
6.3.2	Parameterstudie	89
6.3.3	Bewertung der Ergebnisse	96
7	Zusammenfassung und Ausblick	99
8	Literaturverzeichnis	103
Anhang	109
A1	Stoffeigenschaften	109
A1.1	Thermodynamische Eigenschaften	109
A1.2	Transporteigenschaften	111
A2	Nachrechnung der Versuchsreihe mit gekühltem Katalysator	115
	Danksagung	119

Nomenklatur

Abkürzungen

<u>Abkürzung</u>	<u>Bedeutung</u>
BPG	<u>B</u> est <u>P</u> ractise <u>G</u> uidelines
CFD	Numerische Strömungsmechanik (<u>C</u> omputational <u>F</u> luid <u>D</u> ynamics)
CONAN	<u>C</u> ondensation with <u>A</u> erosols and <u>N</u> oncondensables
DBA	Auslegungsstörfall (<u>D</u> esign- <u>B</u> asis <u>A</u> ccident)
DNS	<u>D</u> irekte <u>n</u> umerische <u>S</u> imulation
DWR	<u>D</u> ruck <u>w</u> asser <u>r</u> eaktor
ER	<u>E</u> ley- <u>R</u> ideal-Reaktion
ESBWR	<u>E</u> conomic <u>S</u> implified <u>B</u> oiling <u>W</u> ater <u>R</u> eactor
FZJ	<u>F</u> orschungs <u>z</u> entrum <u>J</u> ülich GmbH
GK	<u>G</u> ebäude <u>k</u> ondensator
GRS	<u>G</u> esellschaft für <u>R</u> eaktor- und Anlagensicherheit
IAEA	<u>I</u> nternational <u>A</u> tomic <u>E</u> nergy <u>A</u> gency
INKA	<u>I</u> ntegral Tests <u>K</u> arlstein
IPSS	<u>I</u> nnovative <u>P</u> assiv <u>S</u> afety <u>S</u> ystems
KMV	<u>K</u> ühl <u>m</u> ittel <u>v</u> erlust
LES	Grobstruktursimulation (<u>L</u> arge <u>E</u> ddy <u>S</u> imulation)
LH	<u>L</u> angmuir- <u>H</u> inshelwood-Mechanismus
LP	<u>L</u> umped <u>P</u> arameter
LWR	<u>L</u> eicht <u>w</u> asser moderierter <u>R</u> eaktor
NOKO	<u>N</u> ot <u>k</u> ondensator-Versuchsstand
OECD	<u>O</u> rganisation for <u>E</u> conomic <u>C</u> o-operation and <u>D</u> evelopment
PANDA	<u>P</u> assiv <u>N</u> achwärmeabfuhr und <u>D</u> ruck <u>a</u> bbau-Versuchsanlage
PAR	Katalytischer Wasserstoffrekombinator (<u>P</u> assiv <u>A</u> uto-catalytic <u>R</u> ecombiner)
PCCS	<u>P</u> assiv <u>C</u> ontainment <u>C</u> ooling <u>S</u> ystem (ESBWR)

PSI	<u>P</u> aul <u>S</u> cherrer <u>I</u> nstitut, Schweiz
RANS	<u>R</u> eynolds <u>a</u> veraged <u>N</u> avier <u>S</u> tokes Gleichungen
RDB	<u>R</u> eaktordruck <u>b</u> ehälter
REKO	<u>R</u> ekombinator-Versuchsanlagen
RTD	Widerstandsthermometer
SA	Auslegungsüberschreitender Störfall (<u>S</u> evere <u>A</u> ccident)
SARNET	EU-Netzwerk: <u>S</u> evere <u>A</u> ccident <u>R</u> eseach <u>N</u> etwork
SB	<u>S</u> icherheits <u>b</u> ehälter
SST	<u>S</u> hear <u>S</u> tress <u>T</u> ransport Turbulenzmodell
SWR	<u>S</u> iedewasser <u>r</u> eaktor
TEMPEST	<u>T</u> esting and <u>E</u> nhanced <u>M</u> odelling of <u>P</u> assive <u>E</u> volutionary <u>S</u> ystems <u>T</u> echnology for Containment Cooling
vh	<u>V</u> erhältnis

Lateinische Symbole

<u>Formelzeichen</u>	<u>Einheit</u>	<u>Erläuterung</u>
Δh_R	$\frac{J}{kg}$	Spezifische Reaktionsenthalpie
Δh_{lat}	$\frac{J}{kg}$	Latente Wärme der Kondensation
j	$\frac{J}{s}, \frac{mol}{s}$	Diffusionsstrom
M	$\frac{kg}{kmol}$	Molmasse
p	Pa	Druck
R	$\frac{J}{molK}$	Allgemeine Gaskonstante
\dot{S}	$\frac{kg}{m^3 s}, \frac{J}{m^3 s}$	Quell- oder Senkenterm
t	s	Zeit
T	K	Temperatur
x, y, z	m	Koordinate
u, v, w	$\frac{m}{s}$	Geschwindigkeitskomponente in x, y, z-Richtung
v	-	Diffusionsvolumen
X	$Vol. - \%$	Volumenanteil
Y	$Gew. - \%$	Massenanteil

\dot{w}_R	$\frac{\text{kg}}{\text{m}^3 \text{s}}$	Reaktionsrate
A	m^2	Fläche
c	$\frac{\text{mol}}{\text{m}^3}$	Molare Konzentration
c_p	$\frac{\text{J}}{\text{kgK}}$	Isobare Wärmekapazität
c_v	$\frac{\text{J}}{\text{kgK}}$	Isochore Wärmekapazität
d	m	Durchmesser
D	$\frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	Binärer Diffusionskoeffizient
d_h	m	hydraulischer Durchmesser
E	J	Energie
f	N	Feldkräfte
h	$\frac{\text{J}}{\text{kg}}$	Spezifische Enthalpie
k	$\frac{\text{J}}{\text{kg}}$	turbulente kinetische Energie
$k(T)$	-	Geschwindigkeitskonstante einer chem. Reaktion
U	m	Umfang

Griechische Symbole

<u>Formelzeichen</u>	<u>Einheit</u>	<u>Erläuterung</u>
α	$\frac{\text{W}}{\text{m}^2 \text{K}}$	Wärmeübergangskoeffizient
δ_{ij}	-	Kronecker-Symbol
ε	$\frac{\text{J}}{\text{kg s}}$	Dissipationsrate
ϕ		bel. Strömungsgröße (u, v, w, T, p ..)
κ	$\frac{\text{kg}}{\text{ms}}$	Dehnungsviskosität
λ	$\frac{\text{W}}{\text{mK}}$	Wärmeleitfähigkeit
μ	$\frac{\text{kg}}{\text{ms}}$	Dynamische Viskosität
ν	-	Stöchiometrischer Koeffizient
ρ	$\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	Dichte
τ_{ij}	$\frac{\text{N}}{\text{m}^2}$	Schubspannungstensor
ω	$\frac{1}{\text{s}}$	Wirbelfrequenz

Subskripte

<u>Zeichen</u>	<u>Bedeutung</u>
0	Bezugswert (Standardbildungsenthalpie, Normbedingung, etc.)
a	Aktivierungs-
$bulk$	im Bulk
f	fühlbare
i	Interface-
i, j, k	Zähler für die Raumrichtungen
in	am Eintritt
n, m	Zähler für die chemischen Spezies
nG	Nichtkondensierbare Gase
P	Poren-
sek	Sekundärseitig
s	Sättigungsbedingung für Wasserdampf
t	turbulent
w	an der Wand
x	lokaler Wert

Superskripte

<u>Zeichen</u>	<u>Bedeutung</u>
$-$	Zeitliches Mittel, Volumenmittel
\sim	Dichte gemittelt
$', ''$	Fluktuierende Größen
c	Wärmeleitung-
CFD	CFD-Berechnung
d	Diffusions-
kat	Katalysator
l	laminar
q	Wärme-

Dimensionslose Kennzahlen

<u>Zeichen</u>	<u>Formel</u>	<u>Bedeutung</u>
Nu	$\frac{\alpha L}{\lambda}$	Nusselt-Zahl
Pr	$\frac{\mu c_p}{\lambda}$	Prandtl-Zahl
Re	$\frac{\rho v L}{\mu}$	Reynolds-Zahl
Sc	$\frac{\mu}{\rho D}$	Schmidt-Zahl
Sh	$\frac{\beta L}{D}$	Sherwood-Zahl

Chemische Formeln

<u>Formel</u>	<u>Beschreibung</u>
Al	Aluminium
B_4C	Borcarbit
CO_2	Kohlendioxid
Fe	Eisen
Fe_2O_3	Eisen(II)Oxid
Fe_3O_3	Eisen(III)Oxid
H_2	Wasserstoff
H_2O	Wasser
N_2	Stickstoff
O_2	Sauerstoff
Zr	Zirkon
ZrO_2	Zirkonoxid

1 Einleitung

Die Reaktorsicherheit basiert auf dem „Defense-in-Depth“-Konzept, das 1996 von der Internationalen Atomenergie Behörde (IAEA) [IAE96] eingeführt wurde. In Deutschland führte die zunehmende Berücksichtigung dieses Prinzips zur Entwicklung des Konzepts der „gestaffelten Sicherheitsebenen“ [RSK05], das im Zuge der Neuordnung des kerntechnischen Regelwerks umgesetzt werden soll. Dieses Konzept besteht aus einer Kombination verschiedener technischer Sicherheitssysteme und organisatorischer Maßnahmen zur Vermeidung bzw. Beherrschung von Störungen und Störfällen (Ebene 1, 2, 3), zur Begrenzung der Auswirkungen von Unfällen (Ebene 4) und Maßnahmen zur Unterstützung des externen Notfallschutzes (Ebene 5). Dieses Konzepts ist grundsätzlich präventiv ausgerichtet und zielt darauf ab, mögliches menschliches Fehlverhalten und das Versagen technischer Einrichtungen zu kompensieren, die Integrität der technischen Barrieren zu erhalten und somit die Bevölkerung vor möglichen Unfallfolgen zu schützen. Abbildung 1.1 zeigt die fünf Stufen des gestaffelten Sicherheitskonzepts.

Sicherheitsebene	Ziele	Umsetzung
5) Erhebliche Freisetzung	Minderung der radiologischen Konsequenzen	Externes Unfallmanagement
4) Auslegungsüberschreitende Ereignisse: a) seltene Ereignisse, z. B. Flugzeugabsturz b) Mehrfachversagen von Sicherheitseinrichtungen c) schwere Kernschäden	a) Beherrschung von Transienten ohne Schnellabschaltung sowie Notständen b) Vermeidung von Kernschmelzen c) Schadensminderung	Ergänzende Sicherheitssysteme und Notfallschutzmaßnahmen
3) Auslegungsstörfälle	Beherrschung von Auslegungsstörfällen	Sicherheitstechnische Einrichtungen und Handlungsanweisungen für Störfälle
2) Anomaler Betrieb	Beherrschung von Betriebsstörungen und Fehlererkennung	Kontroll-, Begrenzungs- und Sicherheitssysteme sowie Überwachungsmöglichkeiten
1) Normalbetrieb	Vorbeugung und Vermeidung von Betriebsstörungen und Systemausfällen	Konservative Anlagenauslegung, hohe Qualität bei Bau und Betrieb

Abb. 1.1: Aufbau des gestaffelten Sicherheitskonzepts, nach [RSK05]

Bei modernen Reaktorkonzepten der Generationen III und III+ wird dieses Konzept im Vergleich zu bestehenden Anlagen durch passive Systeme verbessert umgesetzt. Passive Systeme sind in Bezug auf Leittechnik, Systemtechnik und die Zahl der Redundanzen einfacher und übersichtlicher aufgebaut, vereinfachen Bedienung und Wartung und schließen menschliches Fehlverhalten und Versagen technischer Komponenten durch ihr inhärent sicheres Funktionsprinzip, also ausschließlich aufgrund physikalischer Prinzipien, wie z. B. Gravitation oder Kondensation, aus.

Die dritte Stufe bezieht sich auf Auslegungsstörfälle (DBA: Design-basis accident). Hierzu gehört vor allem die sichere Abfuhr der Nachzerfallsleistung aus dem Kern. Sie wird überwiegend durch aktive Systeme sichergestellt, wie z. B. Not- und

Nachkühlpumpen. Der Schutz der Integrität des Sicherheitsbehälters (SB) als letzte Barriere gegen die Freisetzung von Spaltprodukten in die Umgebung ist integraler Bestandteil der dritten und vierten Stufe und kommt bei einer Schädigung von Komponenten des Reaktorkühlkreislafs zum Tragen. Im Verlauf von Kühlmittelverluststörfällen (KMV) steigen bei leichtwassergekühlten Reaktoranlagen (LWR) Druck und Temperatur im SB durch die Nachzerfallswärme und somit die Verdampfung des Kühlwassers stetig an. Moderne Reaktorkonzepte sehen verschiedene passive Sicherheitssysteme vor, um den Druckaufbau zu begrenzen und somit die Integrität des SB sicherzustellen. Der wesentliche Bestandteil ist die Kondensation des Wasserdampfs und die Rückführung des Kondensats für die Kernkühlung. Nach de la Rosa [ROS09] sind hierbei prinzipiell drei Möglichkeiten zu unterscheiden:

- Kondensation an einem Wärmetauscher und Abfuhr der Kondensationswärme nach dem Naturumlaufprinzip in eine höher gelegene Wasservorlage (z. B. SWR1000, ESBWR)
- Kondensation in Kondensationskammern, in deren Wasservorlage der Dampf eingeblasen wird und kondensiert (allg. SWR)
- Kondensation an der Innenseite der Containmentwand und Abfuhr der Kondensationswärme durch die Wand (z. B. AP1000)

Die passiven Druckabbausysteme, z. B. der Gebäudekondensator im SWR1000 oder das Passive Containment Cooling System (PCCS) im ESBWR, wurden, z. B. im Projekt IPSS (Innovative Passive Safety Systems [HIC00]) des 4. EU-Rahmenprogramms oder im Projekt TEMPEST (Testing and Enhanced Modelling of Passive Evolutionary Systems Technology for Containment Cooling [WIC04]) im 5. EU-Rahmenprogramm intensiv untersucht und ihre Eignung für Auslegungsstörfälle, also für die dritte Stufe des Defense-in-Depth-Konzepts, demonstriert. Sie sind so dimensioniert, dass prinzipiell nur aufgrund ihrer Funktion schwere, auslegungsüberschreitende Störfälle (SA: Severe Accident) vermieden werden können. Unterstellt man dennoch den Eintritt eines SA, so wird gefordert, dass die passiven Systeme allein genügen, um den Reaktorkern und den SB in einen sicheren Zustand zu überführen und zu halten [HIC00].

Im Fall eines SA kann die Kernkühlung nicht sichergestellt werden. Dies führt zur Freilegung und Überhitzung des Reaktorkerns. Die exotherme Oxidation vor allem der Zircaloy-Brennstabhüllrohre aber auch metallischer Kerneinbauten, wie z. B. der Brennelementkästen oder Absorberelemente mit heißem Wasserdampf, führt zu einer rapiden Wasserstoffproduktion. In dieser sogenannten In-Vessel-Phase können beispielsweise im SWR1000 innerhalb weniger Stunden bis zu 2360 kg ($\sim 26000 \text{ m}_n^3$)

Wasserstoff entstehen [KOL04] und in den SB freigesetzt werden. Im späten Verlauf eines solchen auslegungsüberschreitenden Störfalls kann nach Durchschmelzen des Reaktordruckbehälters weiterer Wasserstoff aufgrund der Beton-Schmelze-Wechselwirkung in den SB freigesetzt werden [SCW05].

Zur Vermeidung eines schlagartigen Druckaufbaus infolge der Verbrennung eines zündfähigen Wasserstoff-Luft-Gemischs ist der SB in vielen SWR teilweise bzw. vollständig inertisiert. Die Freisetzung von Wasserstoff hat auch einen weiteren Druckaufbau innerhalb des SB zur Folge, der durch das zur Verfügung stehende freie Gasvolumen bestimmt wird. Beim SWR1000 z. B. führt allein eine Freisetzung von $26.000 \text{ m}_n^3 \text{ H}_2$ in ein freies Gasvolumen von rund 12.000 m^3 zu einem zusätzlichen Druckaufbau von ca. 2,2 bar, was im Auslegungsdruck des SB berücksichtigt werden muss. Dieser liegt beim SWR1000 bei 7,0 bar [STO08].

In vielen DWR werden anstelle einer Vorinertisierung des SB katalytische Rekombinatoren (PAR: Passive Auto-catalytic Recombiner) [BAC03] eingesetzt, die den Wasserstoff flammlos und bereits unterhalb der Zündgrenze und auch in dampf-inertisierten Gemischen mit dem Luftsauerstoff zu Wasserdampf rekombinieren. Sie sind Bestandteil der anlageninternen Notfallschutzmaßnahmen.

Neben der Problematik des Druckaufbaus kann der Wasserstoff aber auch die Funktion passiver Sicherheitseinrichtungen, insbesondere der Gebäudekondensatoren, beeinträchtigen. Diese funktionieren nach dem Prinzip der Naturkonvektion, also auf der Basis von Dichtegradienten. Wasserstoff reduziert aufgrund seines sehr geringen spezifischen Gewichts den Dichtegradienten und somit die treibenden Kräfte. Ebenso führt der zusätzlich in den SB freigesetzte Wasserstoff zur Reduktion des Verhältnisses von Wasserdampf zu nichtkondensierbaren Gasen und damit zur Reduktion der Kondensationsrate. Durch das Auskondensieren des Wasserdampfs kann sich Wasserstoff aus dem Gasgemisch anreichern und zu einer Schichtung in der SB-Atmosphäre führen, die den Gebäudekondensator blockieren kann [HIC00].

In den verschiedenen innovativen SWR-Konzepten sind daher Überströmröhre zwischen Druckkammer und Kondensationskammer vorgesehen, die bei einem Druckunterschied zwischen diesen Räumen nichtkondensierbares Gas, hauptsächlich aus Wasserstoff bestehend, in die Kondensationskammer spülen. Dies führt – bis zur erneuten Anreicherung von Wasserstoff – zur Erhöhung der Kondensatorleistung, jedoch nicht zu einer Reduktion des Druckniveaus im SB, da die Kondensationskammer den Gegendruck zur Druckkammer darstellt.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird basierend auf dem Gebäudekondensator des SWR1000, ein neues, erweitertes Kondensatorkonzept auch zur Anwendung in DWR vorgeschlagen: Hierbei sind in das Kondensatorbündel zusätzliche mit Kata-

lysator beschichtete Rohre integriert. An diesen rekombiniert der Wasserstoff mit dem vorhandenen Restsauerstoff zu Wasserdampf, so dass der für die Kondensation treibende Dampfgradient erhöht wird. Der Abbau des Wasserstoffs führt zu einer Erhöhung des Dichtegradients über dem Bündel, was gasseitig in einer höheren Durchströmung resultiert.

Beide Effekte wirken sich in einer höheren Kondensationsrate und damit effektiveren Druckbegrenzung im Verlauf eines schweren Störfalls aus. Daneben führt auch die katalytische Reaktion gemäß der Bruttoreaktionsgleichung



zum Druckabbau. Denn betrachtet man die Stoffmengenbilanz, reagieren anderthalb mol Edukte zu einem mol Produkt, welches anschließend an den Kondensatorrohren zumindest teilweise auskondensiert.

Ziel der Arbeit ist die Untersuchung dieser Konzeptidee. Hierzu werden Modelle zur Beschreibung von katalytischer Oberflächenreaktion und Wandkondensation in einem kommerziellen CFD (Computational Fluid Dynamics)-Code entwickelt und die gasseitigen Phänomene an einem kombinierten Rekombinator/Kondensator-System detailliert untersucht.

Die Arbeit ist wie folgt gegliedert: In Kapitel zwei wird zunächst, am Beispiel des Reaktorkonzepts des SWR1000, der Gebäudekondensator in das Sicherheitskonzept eines modernen Reaktors eingegliedert. Anhand vorangegangener Arbeiten werden offene Fragestellungen und Verbesserungspotentiale aufgezeigt. Abschließend wird kurz auf die bisherige Anwendung von Katalysatorelementen zum Wasserstoffabbau eingegangen. In Kapitel drei werden die notwendigen theoretischen Grundlagen zur Beschreibung von turbulenten, reaktiven Strömungen, Wandkondensation und heterogener Katalyse erläutert. Darauf basierend und anhand der in Kapitel vier vorgestellten experimentellen Daten werden dann in Kapitel fünf numerische Modelle abgeleitet und validiert. In Kapitel sechs werden zunächst die bei einem Störfall zu erwartenden Randbedingungen diskutiert und anhand einer Parameterstudie das Verhalten eines kombinierten Rekombinator/Kondensator-Systems untersucht. Das letzte Kapitel fasst die erzielten Ergebnisse zusammen und gibt einen Ausblick.

2 Stand der Technik

2.1 Reaktorkonzepte mit passiven Sicherheitssystemen

Verschiedene moderne Reaktorkonzepte der Generationen III und III+, wie z. B. der Advanced Pressurized Water Reactor AP1000, ein DWR von Westinghouse, der Economic Simplified Boiling Water Reactor (ESBWR), ein SWR von General Electric oder auch der SWR1000 von AREVA NP, nutzen diverse passive Systeme zur Störfallbeherrschung. Wesentliches Schutzziel ist neben der Kühlung des Reaktorkerns die Begrenzung des Druckaufbaus im SB und somit die Gewährleistung der Integrität des SB. Dies geschieht durch Kondensation des Wasserdampfs und Rückführung des Kondensats zur Kühlung in den Reaktorkern.

Am Beispiel des SWR1000 wird im Folgenden der in dieser Arbeit betrachtete Gebäudekondensator (GK) in das Sicherheitskonzept eines modernen Reaktors mit passiven Sicherheitssystemen eingegliedert.

Der SWR1000 [STO08] wird seit 1992 von der Siemens KWU - heute AREVA NP - entwickelt. Seine thermische Leistung beträgt 3370 MW, die elektrische Bruttoleistung 1290 MW. Das Konzept baut auf den Erfahrungen der deutschen SWR-Baulinien 69 und 72 auf. Gleichzeitig wird durch den Einsatz passiver Sicherheitskomponenten eine einfachere und übersichtlichere Systemtechnik geschaffen. Durch Vergrößerung der um den Reaktorkern angebrachten Wasservorräte wird eine längere Karenzzeit von bis zu drei Tagen für Maßnahmen des Personals nach Störfallbeginn erreicht. Abbildung 2.1 zeigt schematisch den Aufbau des SWR1000. Im Vergleich mit bestehenden SWR wurde oberhalb der Kondensationskammer ein zusätzliches Wasserbecken, das sogenannte geodätische Flutbecken, und diverse passive Sicherheitseinrichtungen im SB angeordnet.

Mittels vier Notkondensatoren wird im Störfall die Nachwärme aus dem Reaktor-druckbehälter (RDB) passiv in das geodätische Flutbecken abgeführt. Das geodätische Flutbecken wird nicht nur als Wärmesenke für den Notkondensator genutzt, sondern auch für die Druckentlastung des RDB. Hierzu wird der heiße Wasserdampf über sechs Sicherheits- und Entlastungsventile in die Wasservorlage eingeleitet und kondensiert dort. Außerdem kann das Wasser zur Flutung des RDB (während des Niederdruckpfads) oder auch zur Flutung des unteren Bereichs der Druckkammer verwendet werden, um den RDB von außen zu kühlen. Zur Kernflutung ist ein federbelastetes Rückschlagventil in der Flutleitung vorgesehen, welches bei Unterschreiten einer Druckdifferenz von $\Delta p=5$ bar zwischen RDB und geodätischem Flutbecken öffnet und Dampf aus dem RDB in das Becken strömen lässt. Nach dem

Druckausgleich strömt Wasser aus dem Flutbecken in den RDB zurück und steht zur Kühlung des Kerns zur Verfügung.

Eine selbsttätige Ansteuerung und Aktivierung von Sicherheitssystemen erfolgt über passive Impulsgeber, die Ventile aktivieren. Sie sind auf verschiedenen Höhen angeordnet und können den Gebäudeabschluss, die Reaktorschnellabschaltung, eine Borvergiftung oder auch eine Druckentlastung des Kerns auf passive Weise anregen. Somit ist selbst beim Störfall „Ausfall der Stromversorgung der Anlage“ eine lange Karenzzeit für Maßnahmen des Personals gewährleistet.

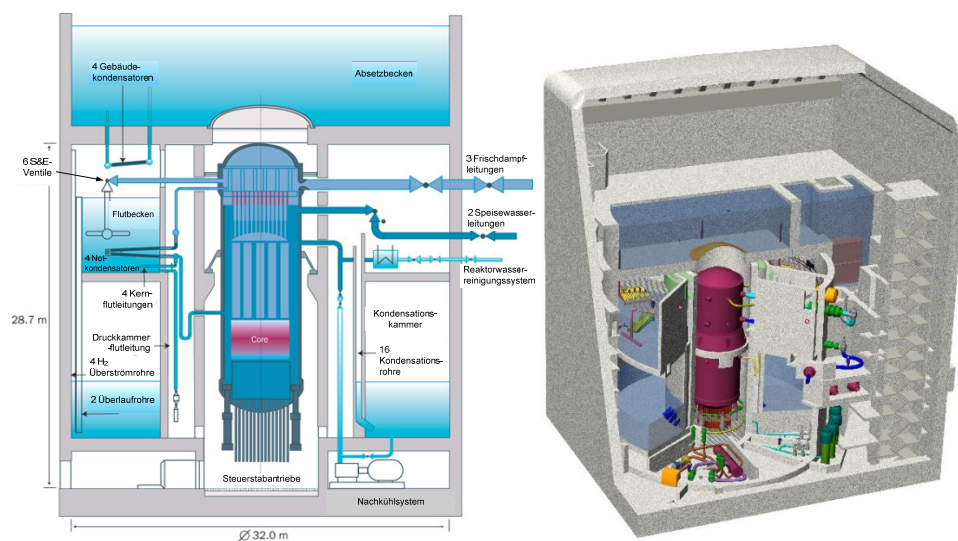
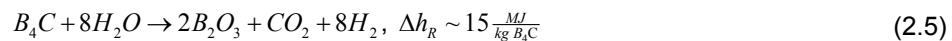
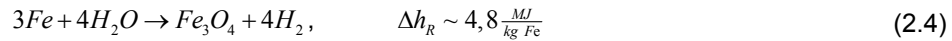
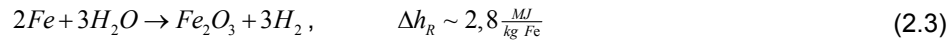
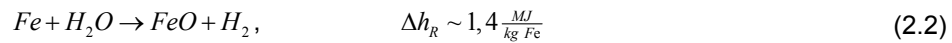
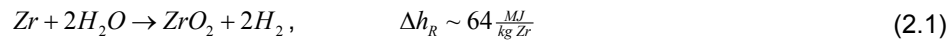


Abb. 2.1: SWR1000: Konzept und passive Sicherheitseinrichtungen [SWR98, LEY08, ST08]

In den ersten Stunden eines Störfalls heizt sich das Flutbecken bis zum Siedezustand auf. Ab diesem Punkt entspricht die Verdampfungsrate aus dem Flutbecken der Nachzerfallsleistung. In der folgenden langfristigen Phase des Störfalls stellen die vier Gebäudekondensatoren die einzige Wärmesenke für die Kühlung des SB dar und begrenzen somit den Druckaufbau. Sie sind im oberen Bereich der Druckkammer installiert und für eine maximale Leistung von jeweils 4,8 MW [LEY08] ausgelegt. Integraleexperimente an der PANDA Anlage (Passive Nachwärmeabfuhr und DruckAbbau, PSI, Schweiz) zeigen, dass der Druck in einem solchen Auslegungsstörfall auf 3 bar begrenzt wird [HIC00, DRE99].

Unterstellt man das Versagen des Kernflutsystems, so wird der Reaktorkern freigelegt und überhitzt. Bei Temperaturen oberhalb von 900°C kommt es zur Oxidation der Zirkaloy-Hüllrohre, der Brennelementkästen sowie des Borcarbits (B₄C) und Eisens der Absorberstäbe mit dem überhitzten Wasserdampf gemäß der folgenden Bruttoreaktionsgleichungen [ECP02]:



Die Wärmefreisetzung dieser exothermen Reaktionen übersteigt die Nachzerfallsleistung und beschleunigt die Kernaufheizung. Bei einem Zirkoniuminventar von 53,8 t (21 t Brennelementkästen, 1,8 t Wasserkanäle, 1,3 t Abstandshalter, 29,7 t Hüllrohre) im SWR1000 [KOL04] führt dies bei vollständiger Oxidation zu einer maximalen Wasserstoffproduktion von 2360 kg ($\sim 26.000 \text{ m}_n^3$) innerhalb weniger Stunden. Der entstandene Wasserstoff wird über die Bruchstelle oder die Sicherheits- und Entlastungsventile in die Druckkammer freigesetzt und führt zu einem raschen Druckanstieg um ca. 2 bar auf bis zu 5 bar (vgl. Versuche BC4/5, [HIC00]). Der SB hat einen Auslegungsdruck von 7,0 bar [STO08], die Begrenzung des Maximaldrucks und somit eine zuverlässige Funktion des Gebäudekondensators sind gerade im Verlauf eines solchen auslegungsüberschreitenden Störfalls sicherzustellen.

Zur Rückhaltung der Kernschmelze im RDB wird die Reaktorkaverne mit einem Teil der Wasservorlage aus den geodätischen Flutbecken geflutet. Das Fluten wird mittels eines passiven Signalgebers bei Absinken des Wasserstands im RDB unter 5,8 m ausgelöst, so dass beim SWR1000 eine weitere Wasserstoffproduktion aufgrund einer Schmelze-Beton-Wechselwirkung als sehr unwahrscheinlich angesehen werden kann.

2.2 Gebäudekondensator

2.2.1 Funktionsprinzip

Nach de la Rosa [ROS09] sind zum Druckabbau im SB durch Kondensation des Wasserdampfs, der im Verlauf des Störfalls in den SB freigesetzt wird, prinzipiell drei Möglichkeiten zu unterscheiden:

- Kondensation an einem Wärmetauscher und Abfuhr der Kondensationswärme nach dem Naturumlaufprinzip in eine höher gelegene Wasservorlage
- Kondensation in Kondensationskammern, in deren Wasservorlage der Dampf eingeblasen wird und kondensiert
- Kondensation an der Innenseite der Containmentwand und Abfuhr der Kondensationswärme durch die Wand

Die Kondensation in sogenannten Kondensationskammern wird bereits in bestehenden SWR, z. B. den deutschen Baureihen 69 und 72 angewandt und ist auch weiterhin in SWR-Konzepten der Generationen III und III+ vorgesehen. Zur Verbesserung der Wärmeabfuhr durch Kondensation auf der Innenseite der Containmentwand besitzt der AP1000 ein doppelwandiges Containment (vgl. Abb. 2.2).

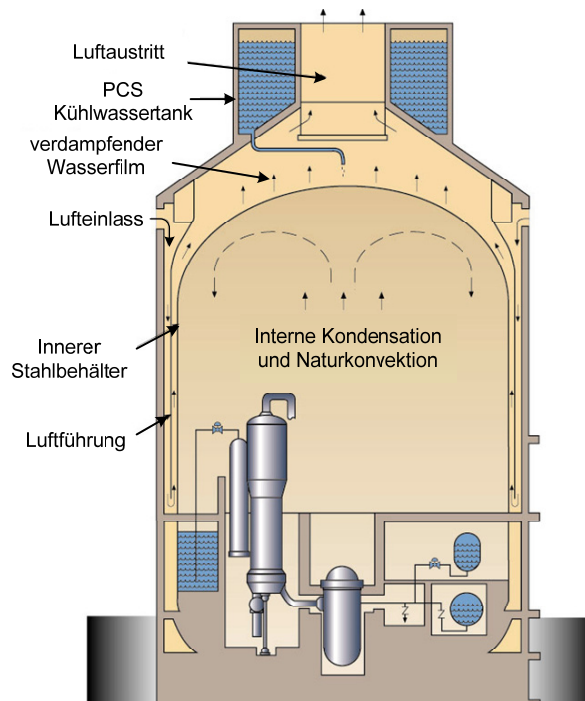


Abb. 2.2: SB-Kühlung im AP1000 [WES09]

Zwischen der druckhaltenden inneren Stahlschale und der Betonwand ist ein Luftspalt vorgesehen. Der Wasserdampf kondensiert auf der Innenseite des Containments und überträgt seine Kondensationswärme über die innere Stahlwand an die Luft. Diese erwärmt sich, strömt aufgrund des sich einstellenden Naturzugs im Spalt nach oben und verlässt das Reaktorgebäude über den Luftaustritt. Zusätzlich kann die Außenseite der inneren Stahlschale mit einem Wasserspray von oben gekühlt werden.

Für die Kondensation an einem Wärmetauscher existieren zwei Konzepte die sich neben der Bauform des Kondensators vor allem anhand der Durchströmung des Kondensators, also aufgrund von Druckunterschieden (Zwangskonvektion) und Dichteunterschieden (Naturkonvektion), unterscheiden lassen.

Beim ESBWR besteht dieser Kondensator, das sogenannte „Passive Containment Cooling System“ (PCCS), aus senkrecht in dem externen Becken stehenden Rohrbündeln (vgl. Abb. 2.3).

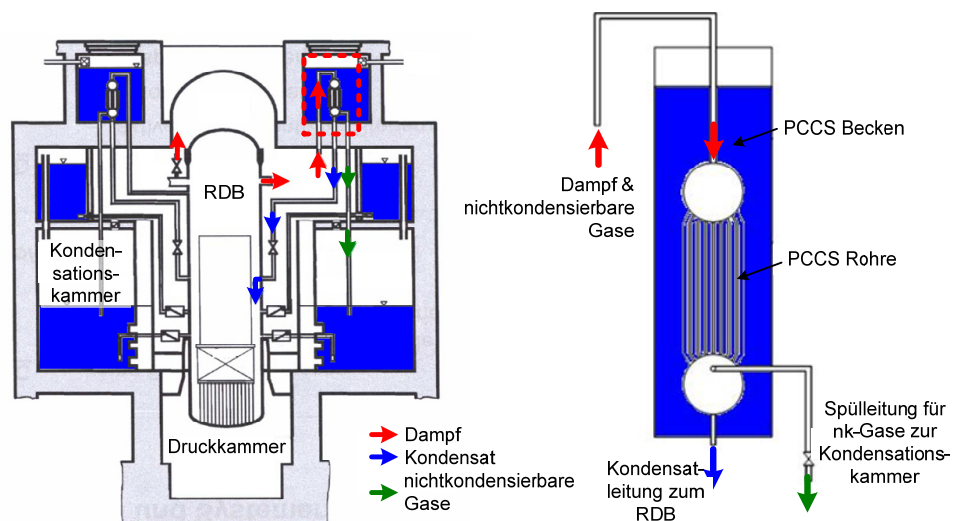


Abb. 2.3: Passive Containment Cooling System ESBWR [HIC00]

Bei auftretendem Druckunterschied wird das Gasgemisch aus Wasserdampf und nichtkondensierbaren Gasen über das PCCS von der Druckkammer in die Kondensationskammer gespült. Der Wasserdampf kondensiert bei diesem Konzept innerhalb der PCCS-Rohre und überträgt seine Kondensationswärme an das die Rohre umgebende Wasser. Das Kondensat wird gesammelt und fließt zur Kühlung in den RDB zurück. Die nichtkondensierbaren Gase werden in die Kondensationskammer gespült.

Im Gegensatz zu diesem Konzept ist der Gebäudekondensator frei im SB angeordnet und wird aufgrund von Naturkonvektion durchströmt. Das Funktions-

prinzip verdeutlicht Abb. 2.4. Der Gebäudekondensator beim SWR1000 besteht aus geneigten Rohren, an deren Außenseite der Wasserdampf kondensiert. Die bei der Kondensation freiwerdende Wärme wird an das Wasser in den Rohren übertragen. Das Wasser erwärmt sich, strömt in das Absetzbecken und kaltes Wasser fließt nach. Es etabliert sich ein Naturumlauf. Das Kondensat sammelt sich im geodätischen Flutbecken und steht wieder für die Kühlung des Reaktorkerns zur Verfügung. Dieses Konzept bietet die beste Übertragbarkeit auf andere Reaktor- und SB-Bauformen und wird daher im Rahmen der Arbeit näher betrachtet.

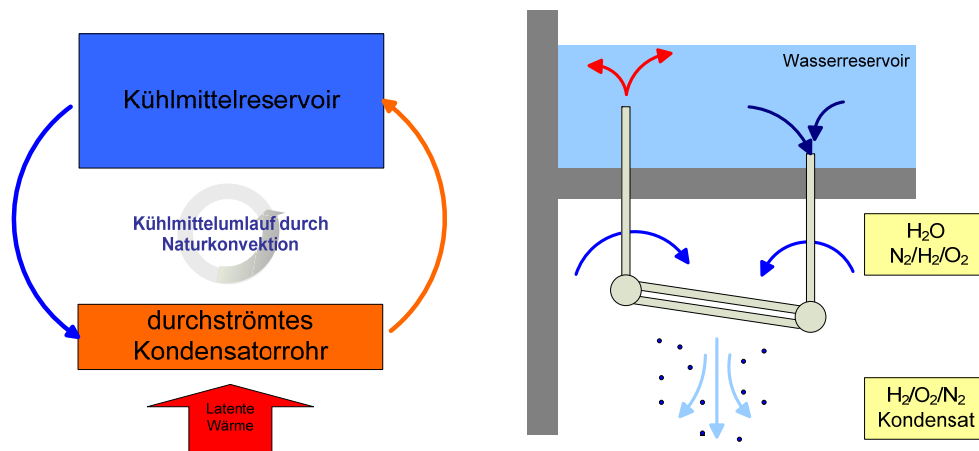


Abb. 2.4: Funktionsprinzip des Gebäudekondensators

Der Gebäudekondensator ist ein Geradrohrwärmeübertrager und besteht aus 290 Rohren, die versetzt in zwei Lagen angeordnet sind. Jedes der Rohre ($l=4000$ mm, $d_i=34$ mm, $s=2$ mm) ist in leichter Schräglage mit einem Winkel von 10° gegenüber der Horizontalen angeordnet. Die Rohre sind zwischen einem Ein- und Austrittssammler installiert [LEY08]. Beide Sammler sind über ein Rohr mit dem Absetzbecken verbunden, das als Wärmesenke für den Gebäudekondensator dient. Abhängig von der Kondensationsrate und der Wassertemperatur im Becken kann die einphasige Strömung in den Rohren infolge von Dampfbildung in eine Zweiphasenströmung übergehen.

Im Kühlmittelverlust (KMV)-Störfall bildet sich mit der RSB-Atmosphäre ein Gasgemisch aus Wasserdampf und den nichtkondensierbaren Gasen N_2 und O_2 . Der Wasserdampf kondensiert an den Rohren und das nichtkondensierbare Gasgemisch aus N_2 und O_2 , welches einen die Kondensationsrate limitierenden Stofftransportwiderstand darstellt, kühlt ab. Durch Teilkondensation des spezifisch leichteren Wasserdampfs und die Abkühlung des Gasgemischs steigt die Dichte des Gasgemischs und es etabliert sich ein nach unten gerichteter Naturzug. Um eine Aufkonzentrierung der nichtkondensierbaren Gase im Bereich des GK zu verhindern,

war zunächst eine Wanne unterhalb des GK vorgesehen, die das abgekühlte Gasgemisch sammeln und über ein Fallrohr in den unteren Bereich der Druckkammer ableiten sollte (vgl. Abb. 2.5 links).

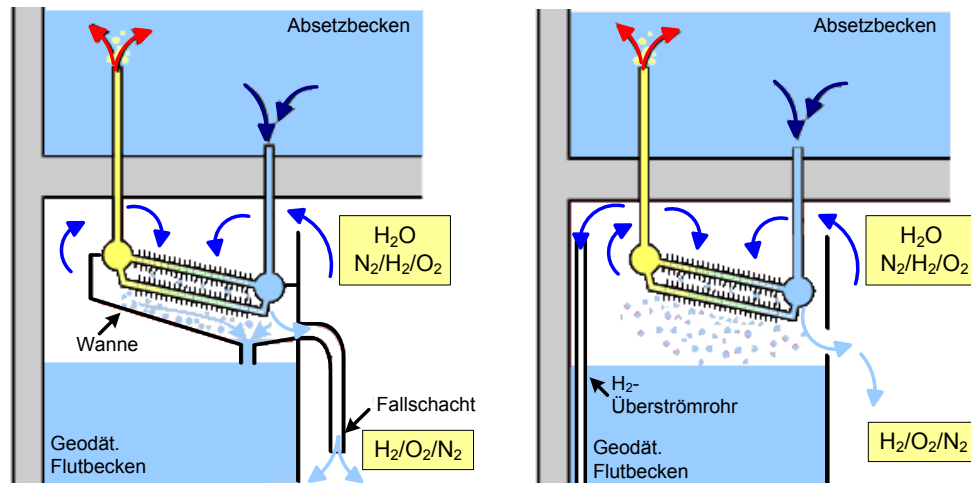


Abb. 2.5: Zwei verschiedene Gebäudekondensatorbündelkonzepte: Mit Wanne und Fallschacht (links), mit H_2 -Überströmrohr (rechts) [HIC00]

Im Verlauf eines auslegungsüberschreitenden Störfalls wird auch Wasserstoff in die Druckkammer freigesetzt. Für die Etablierung des Naturzugs durch das Kondensatorbündel ist das Verhältnis der Dichte des nichtkondensierbaren Gasgemischs zur Dichte des Dampfes von grundlegender Bedeutung. Das sehr leichte Gas Wasserstoff führt zur Reduktion der Dichte des nichtkondensierenden Gasgemischs und somit zur Reduktion des treibenden Dichtegradienten über dem Kondensatorbündel. Bei hohen Wasserstoffkonzentrationen kann der gasseitige Naturzug zum Erliegen kommen, so dass die Leistung des Gebäudekondensators einbricht und der Druck im SB ansteigt [HIC00]. Daher wird beim SWR1000 anstelle der Wanne das in Abbildung 2.5 (rechts) dargestellte H_2 -Überströmrohr vorgesehen. Das eine Ende dieses Rohrs ist oberhalb der Gebäudekondensatoren vorgesehen, das Andere taucht ca. drei Meter tief in die Wasservorlage der Kondensationskammer ein. Bei Akkumulation von Wasserstoff im Bereich der Gebäudekondensatoren, Einbrechen der Leistung der Gebäudekondensatoren und schließlich Blockieren des Gebäudekondensators steigt der Druck in der Druckkammer an. Ist der Druck um $\Delta p=0,3$ bar größer als in der Kondensationskammer, so wird Gas aus dem oberen Bereich der Druckkammer, mit hohem Wasserstoffanteil, in die Kondensationskammer gespült und so die Wasserstoffkonzentration im Bereich der Gebäudekondensatoren reduziert. Die Gebäudekondensatorleistung steigt wieder bis zur erneuten H_2 -Anreicherung an. Als Folge des Überspülens steigen der Druck in der Kondensationskammer und damit auch der Druck im gesamten SB kontinuierlich an.

2.2.2 Bisherige Arbeiten

Während eines KMV-Störfalls tritt eine weite Bandbreite an thermohydraulischen Vorgängen gasseitig (primäre Seite) und auf der Kühlmittelseite (Sekundärseite) des Gebäudekondensators auf. Gasseitig kommt es bedingt durch das Leck zu einer impulsgetriebenen Ausströmung. Druck, Temperatur und der Anteil nicht-kondensierbarer Gase wirken sich je nach Lage des Lecks mehr oder weniger stark auf die dichtegetriebene Naturkonvektionsströmung im SB aus. Auf der sekundären Seite des Gebäudekondensators kann es je nach Eintrittstemperatur und Wärmeleistung zum Sieden des Kühlmittels kommen. Innerhalb des Absetzbeckens kann, je nach Durchmischung mit der Auftriebsströmung des heißen Wassers, eine thermische Schichtung auftreten. Der Wärmeeintrag führt im Störfallverlauf zum Ausdampfen des Absetzbeckens [HIC00]. Alle diese thermohydraulischen Prozesse auf beiden Seiten wirken sich auf die Leistung des Gebäudekondensators aus.

Zur Demonstration des selbstregelnden Verhaltens eines Sicherheitsbehälters mit Gebäudekondensator und H₂-Überströmleitung wurden im EU-Projekt IPSS (Innovative Passive Safety Systems, viertes EU Rahmenprogramm) Integralexperimente an der PANDA-Anlage für verschiedene repräsentative Störfallszenarien durchgeführt.

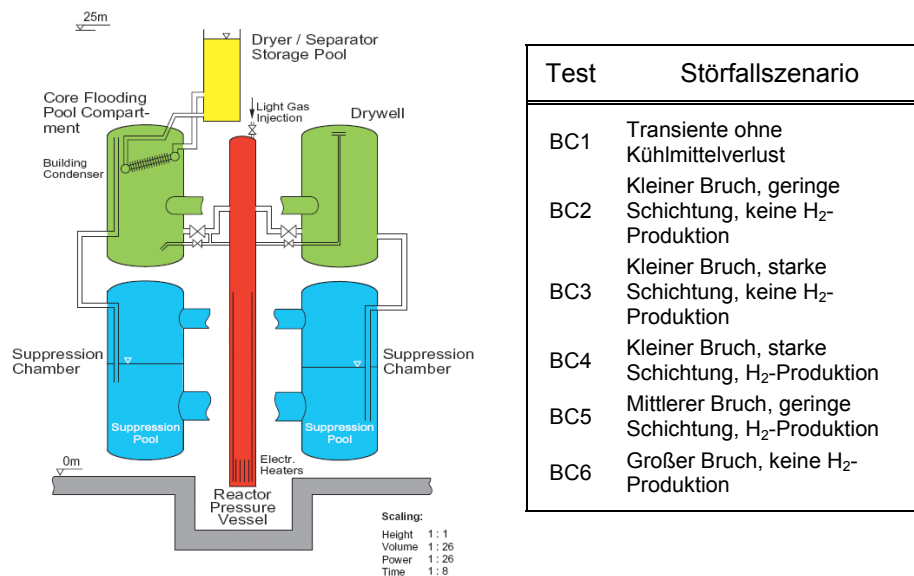


Abb. 2.6: Konfiguration der PANDA-Anlage und untersuchte Störfallszenarien [DRE99, HIC00].

Die PANDA-Anlage stellt eine 1:26 skalierte Version des SWR1000-SB dar. Die Konfiguration der Anlage sowie die durchgeführten Versuchsreihen zeigt Abbildung 2.6.

Die Tests werden anhand der nennenswerten Phänomene (mit/ohne Wasserstoff-freisetzung, Höhe des Lecks, Leckquerschnitt) und deren Haupteinfluss auf das Systemverhalten charakterisiert. Der untersuchte Gebäudekondensator besteht aus 25 Rippenrohren mit einer Länge von 3,1 m. Eine ausführliche Beschreibung der Versuchsreihen findet sich bei Hicken et al. [HIC00] und Dreyer et al. [DRE99]. Diese Integralexperimente zeigten den zuverlässigen Betrieb für eine weite Bandbreite von Auslegungs- und auslegungsüberschreitenden Störfallszenarien. Das System von Gebäudekondensator und H_2 -Überströmleitung/Kondensationskammer ist selbst-regulierend in Bezug auf die Leistung des Gebäudekondensators. D. h. die nicht-kondensierbaren Gase H_2 , O_2 und N_2 werden bei Akkumulation im Bereich der Gebäudekondensatoren selbstständig in die Kondensationskammer überspült und die Leistung des Gebäudekondensators steigt an. Hierbei ist das Auftreten einer Temperatur- und Dichteschichtung essentiell für das Überspülen der nicht-konden-sierbaren Gase. Circa 12 h nach Eintritt des Störfalls ist der negative Einfluss der nichtkondensierbaren Gase auf die Leistung des Gebäudekondensators vernach-lässigbar. Für das Design des Gebäudekondensators bedeutet dies aus thermo-dynamischer Sicht, dass auf die Rippen verzichtet werden kann, was im aktuellen Konzept des SWR1000 auch umgesetzt wurde [LEY08]. Sekundärseitig traten keine Strömungsinstabilitäten auf, jedoch kommt es zeitweise zum Oszillieren des Durchflusses. Es konnte gezeigt werden, dass für den Fall eines Auslegungsstörfalls der Druckaufbau im SB auf 3 bar, bei auslegungsüberschreitenden Störfällen auf 6,5 bar beschränkt werden kann.

Da die Leistung des Gebäudekondensators den langfristigen Druckaufbau im SB bestimmt, wurden neben den Integralexperimenten von Fethke [FET98] Einzeleffekt-Versuche zum Einfluss der verschiedenen nichtkondensierbaren Gase auf das thermohydraulische Verhalten des Gebäudekondensators an der NOKO-Anlage im Forschungszentrum Jülich (heute im Forschungszentrum Dresden-Rossendorf) durchgeführt. Die NOKO-Anlage wurde zur Untersuchung des Notkondensators errichtet und, wie in Abbildung 2.7 dargestellt, für die Testreihen zum Gebäude-kondensator umgebaut. In der Anlage wird ein Ausschnitt von 11 Rippenrohren, wie sie im damaligen Konzept [FET98] vorgesehen waren, untersucht.

Die Abhängigkeit der Kondensatorleistung auf die primärseitigen Parameter Gaszu-sammensetzung und Druck sowie die sekundärseitigen Randbedingungen Kühl-mitteldurchsatz und Kühlmiteleintrittstemperatur wurden in acht Testreihen unter stationären Randbedingungen untersucht. Aufgrund der besseren Messbarkeit wird anstelle von Stickstoff Sauerstoff verwendet, aus sicherheitstechnischen Gründen statt Wasserstoff Helium.

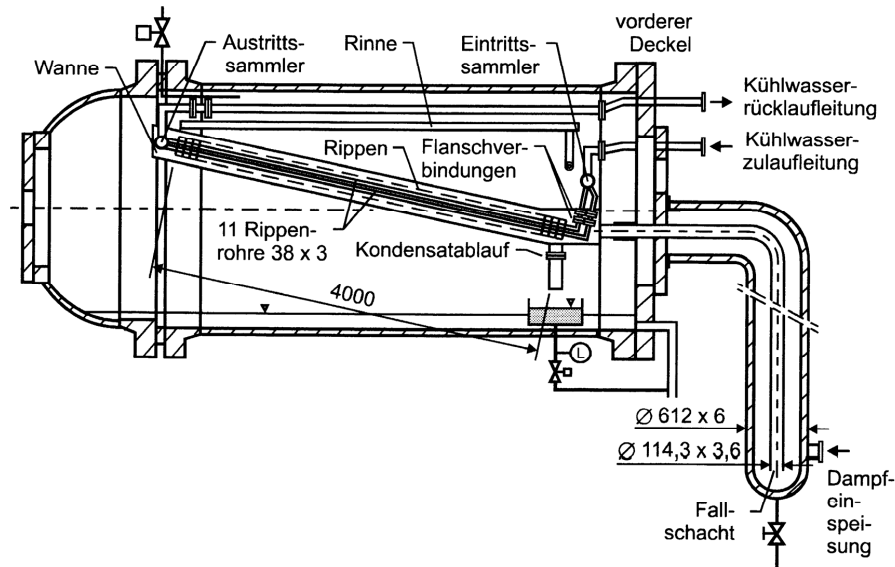


Abb. 2.7: Versuchsaufbau zur Untersuchung des Gebäudekondensators an der NOKO-Anlage [FET98]

Insbesondere wurden Atmosphärenbedingungen mit reinem Dampf – wie sie im späten Störfallverlauf beim SWR1000 auftreten können – und mit einer Dampf/Inertgasatmosphäre – wie sie in der frühen Phase eines schweren Störfalls am SWR1000 oder auch in DWR auftreten können – untersucht. Zur Untersuchung der Effektivität des Gebäudekondensators wurde das Lumped-Parameter(LP)-Rechenprogramm RALOC (Radiolysis and Local Gas Concentration, heute ein Teil es Containment Code Systems COCOSYS der GRS) erweitert und anhand der Versuchsreihen validiert.

Fethke [FET98] konnte nachweisen, dass mit geringerwerdender Dichte des nicht-kondensierbaren Gases die Leistung des GK stärker abnimmt. Dies wird aus den von Fethke mit dem verbesserten GK Modell in RALOC durchgeführten Rechnungen für verschiedene Inertgase deutlich (Abb. 2.8). Dieses Verhalten wird von Fethke dadurch erklärt, dass der für die Durchströmung des Bündels treibende Dichtegradient durch die Teilkondensation von Wasserdampf aus leichteren nichtkondensierbaren Gasen abnimmt. Dies ist insbesondere anhand der Ergebnisse für Helium und Wasserstoff ($\rho_{\text{He}}/\rho_{\text{H}_2}=2$) zu erkennen. Die Ergebnisse von Fethke flossen in das EU-Projekt IPSS ein.

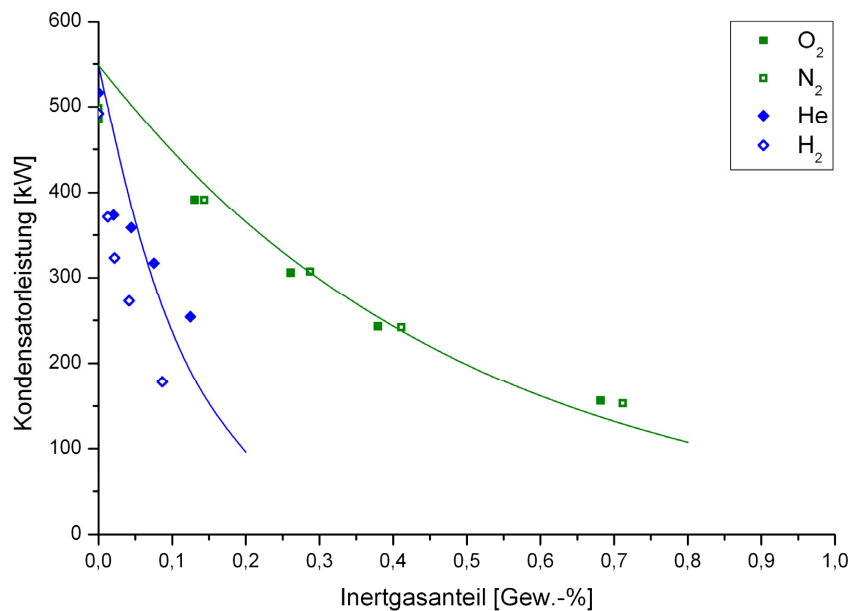


Abb. 2.8: Vergleich der mit RALOC berechneten mittleren Bündelleistung in Abhängigkeit vom Inertgasanteil für verschiedene Inertgase

Um die Drucktransienten vorhersagen zu können, müssen dreidimensionale Effekte wie Durchmischung und Schichtung von Dampf, Stickstoff, Sauerstoff und Wasserstoff in den SB-Räumen abgebildet werden, da sie die Effektivität der passiven Kühlsysteme erheblich beeinträchtigen können. Hauptfokus des EU-Projekts TEMPEST (Testing and Enhanced Modelling of Passive Evolutionary Systems Technology for Containment Cooling) [WIC04] im fünften EURATOM Rahmenprogramm war, die numerischen Methoden zur Bestimmung der Druckreserven in SWR-Sicherheitsbehältern zu verbessern. Hierbei wurden zur Nachrechnung der PANDA-Versuche zum größten Teil LP-Rechenprogramme wie z. B. COCOSYS (GRS), WAVCO (AREVA) oder SPECTRA (NRG, Niederlande) oder dreidimensionale Containmentcodes (z. B. GOTHIC) verwendet. Zur detaillierten Betrachtung der Gasverteilung wurden gekoppelte LP-CFD-Berechnungen für kurze Zeitfenster der Versuche durchgeführt. Diese relativ groben CFD-Modelle ermöglichen jedoch nicht die detaillierte Betrachtung der Vorgänge im Kondensatorrohrbündel. Die Anwendung eines entsprechend fein aufgelösten CFD-Modells für den gesamten Versuch ist aufgrund der hohen numerischen Anforderungen damals – und heute – nicht möglich, jedoch konnten auch mit LP-Ansätzen gute Ergebnisse erzielt werden.

Basierend auf den zuvor beschriebenen internationalen Projekten haben sich die bereits im vorangegangenen Kapitel vorgestellten Reaktorkonzepte bis zur Marktreife entwickelt. Zur Zeit werden von AREVA [LEY08] Integralexperimente an der INKA-Versuchsanlage (Integral Tests Karlstein) durchgeführt, um die Wechselwirkung zwischen Notkondensator und Gebäudekondensator zu untersuchen und abschließend zu demonstrieren, dass die passiven Systeme allein ausreichen, um den Reaktor in jedem unterstellten Störfallszenario in einen sicheren Zustand zu bringen und dort zu halten.

Neben den beschriebenen Untersuchungen zu bereits in Anlagenkonzepten implementierten Wärmetauschern werden aber auch Studien zu anderen Kondensatorkonzepten erstellt. In der PANDA-Anlage und in der NOKO-Anlage wurden z. B. sogenannte Plattenkondensatoren auf ihre Eignung zur passiven Nachwärmeabfuhr aus dem SB untersucht [HIC00, WAR01]. Dieses Konzept wurde jedoch nicht weiterverfolgt, da sich das Konzept des Rohrbündelwärmetauschers mit kompakteren Bauformen realisieren lässt, was besonders bei kleinen SWR-SB wichtig ist [HIC00]. Ein dem GK im SWR1000 vergleichbares Konzept wurde im EU-Projekt INCON (Innovative CONtainment Cooling for Double Concrete Containment) auch für Druckwasserreaktoren, insbesondere den damals diskutierten AP600, untersucht [BER00]. Aktuell wird von Kawakubo [KAW07] ein Rohrbündelkondensator mit vertikalen Rohren vorgeschlagen. Bei diesem Konzept wird die Kondensationswärme bzw. Nachzerfallsleistung über einen geschlossenen Kühlkreislauf aus einem DWR-SB an einen Wärmetauscher außerhalb des SB abgeführt.

2.3 Wasserstoffgegenmaßnahmen

Im Verlauf schwerer, auslegungsüberschreitender Störfälle wird innerhalb kurzer Zeit eine große Menge Wasserstoff in den SB freigesetzt. In diesem Fall reichen die für Auslegungsstörfälle vorgesehenen Systeme zur Durchmischung der SB-Atmosphäre und zum Abbau des Wasserstoffs mit thermischen Rekombinatoren nicht aus. Zur Vermeidung zündfähiger Wasserstoff/Luft/Wasserdampf-Gemische im Verlauf schwerer Störfälle, deren Verbrennung und somit schlagartige Energiefreisetzung zu einer Gefährdung der Integrität des SB führen kann, sind prinzipiell drei Maßnahmen denkbar [SCW05]:

- der Einsatz von Zündern zur frühzeitigen Zündung brennbarer Gemische
- die Inertisierung des SB zur Vermeidung brennbarer Gemische
- der Einsatz katalytischer Wasserstoffrekombinatoren zum flammlosen Abbau von Wasserstoff

Der Einsatz von Zündern ermöglicht eine frühzeitige Zündung brennbarer Gemische und damit prinzipiell auch die Vermeidung höherer Wasserstoffkonzentrationen, bei denen eine Flammbeschleunigung auftreten kann. Sie sind jedoch auf äußere Energiezufuhr angewiesen und ständen somit z. B. bei Störfallszenarien mit Ausfall der Notstromversorgung nicht zur Verfügung. Ebenfalls kann aufgrund der im SB lokal sehr unterschiedlichen Wasserstoffkonzentrationen nicht sichergestellt werden, dass sich eine magere Verbrennung nicht in Bereiche mit höheren Wasserstoffkonzentrationen fortpflanzt und dort aufgrund von Flammbeschleunigung zu signifikant höheren Verbrennungsdrücken und -lasten führt. Dieses Konzept wird daher in Deutschland nicht verwendet, jedoch sind z. B. in den USA Zünder als anlageninterne Notfallschutzmaßnahme nachgerüstet worden.

Wegen der Nachteile bei Betrieb und Wartung der Anlagen wird eine permanente Inertisierung der DWR-SB in Deutschland nicht durchgeführt. Bei SWR der Baureihe 72 sind nur die Kondensationskammern inertisiert, bei der Baureihe 69 der gesamte SB. Eine Nachinertisierung oder Verdünnung der SB-Atmosphäre kann zwar eine unkontrollierte Wasserstoffverbrennung vermeiden, jedoch führt das zusätzliche Einspeisen von Inertgas zum frühzeitigeren Erreichen des Druckentlastungsgrenzwerts für den SB. Zudem ist es schwierig, eindeutige Kriterien und Handlungsanweisungen für das Betriebspersonal zur rechtzeitigen Einleitung der Nachinertisierung zu definieren. Von dieser Option wurde in Deutschland daher ebenfalls abgesehen.

Die Nachrüstung mit katalytischen Wasserstoffrekombinatoren (PAR: Passive Auto-catalytic Recombiners), als Maßnahme des anlageninternen Notfallschutzes in DWR-

Anlagen und den Druckkammern von SWR der Baureihe 72, wurde 1998 von der Reaktorsicherheitskommission empfohlen [RSK98]. Katalytische Rekombinatoren sind Vorrichtungen, an deren katalytischen Oberflächen Wasserstoff mit Luft-sauerstoff bereits bei Raumtemperatur und auch außerhalb der Zündgrenzen, d. h. bei niedrigen Konzentrationen oder dampfinertisierten Gemischen, zu Wasserdampf reagieren kann. Dieser Vorgang findet bei einem katalytischen Rekombinator im Gegensatz zur Verbrennung an einer festen Oberfläche statt und ermöglicht somit die lokale Begrenzung der Reaktion. Die Wärmefreisetzung der exothermen Reaktion gemäß Gl. 1.1 führt zur Erwärmung des Gasgemischs und des Katalysators (Platin oder Palladium), so dass der entstehende Naturzug für eine selbständige Überströmung des Katalysatorelements sorgt. Somit sind katalytische Rekombinatoren passive Einrichtungen, die zur Gewährleistung ihrer Funktion keine externe Energieversorgung benötigen.

Für die Form solcher Katalysatorelemente sind, abgesehen vom verfügbaren Bau-raum, prinzipiell keine Grenzen gesetzt. Im Rahmen des EU-Projekts ThInCAT [FIS03] wurde die katalytische Beschichtung der Isoliermaterialkassetten der Primärkreislaufkomponenten vorgeschlagen. Kommerziell erwerbliche Rekombinatoren der Firma NIS Ingenieurgesellschaft nutzen ein katalytisch beschichtetes poröses Granulat, das in Kassetten gefüllt wird. Im Gegensatz hierzu werden bei den Rekombinatorkonzepten der deutschen Firma Siemens (heute: AREVA) sowie der kanadischen Firma AECL beschichtete Edelstahlfolien eingesetzt. Am Forschungszentrum Jülich wurden beschichtete Edelstahlnetze untersucht [TRA05]. Abbildung 2.9 zeigt beispielhaft einen PAR der Firma AREVA, die in Europa am häufigsten eingesetzte Bauform.

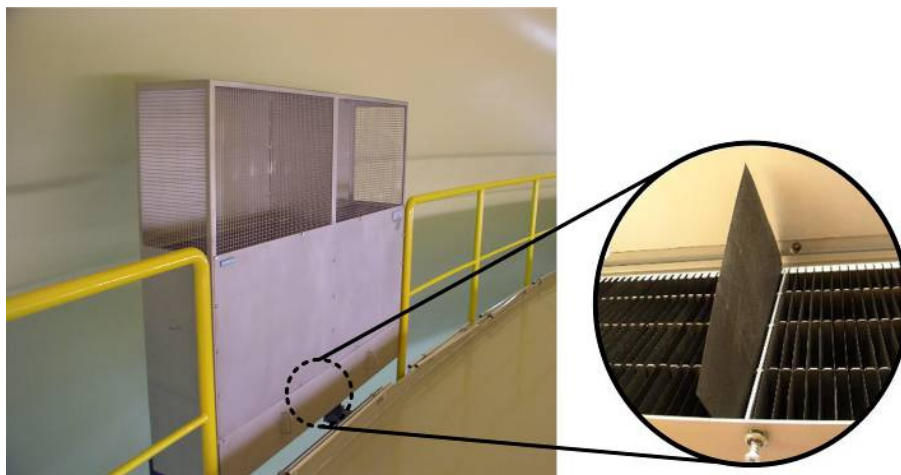


Abb. 2.9: AREVA-Rekombinator: Anordnung im SB und Ausschnitt des Katalysatoreinschubs

Der Nachrüstung von Rekombinatoren gingen umfangreiche Qualifizierungs- und Zertifizierungsarbeiten für den Einsatz im SB kerntechnischer Anlagen voraus. Im Rahmen nationaler und internationaler Testprogramme, z. B. dem EU-Projekt PARSOAR im fünften Rahmenprogramm [BAC03], wurde die Funktionsfähigkeit unter anderem unter den folgenden Bedingungen nachgewiesen:

- Betrieb von Sprühsystemen mit Natronlauge und Borsäure
- Beaufschlagung mit Abgasen aus Öl- und Kabelbränden
- Anwesenheit und Rekombination von CO
- Beaufschlagung mit Aerosolen eines Kernschmelzesimulats inklusive Katalysatorgiften, wie z. B. Tellur, Selen, Jod oder Antimon

Eine zusammenfassende Darstellung zum Stand der Technik der Wasserstoffgegenmaßnahmen findet sich bei Schwinges et al. [SCW05] und im IAEA TECDOC-1196 [IAE01].

Basierend auf diesen Arbeiten wird gefolgert, dass die zuverlässige Funktion der Katalysatorelemente auch für das im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Konzept, der Kombination mit einem Gebäudekondensator, vorausgesetzt werden kann.

Für die Beschreibung der H_2 -Umsatzleistung katalytischer Rekombinatoren existieren empirische Parametermodelle, die aus integralen Demonstrationsexperimenten abgeleitet wurden. In Containmentcodes wie z. B. COCOSYS oder dem Integralcode ASTEC sind detailliertere eindimensionale Modelle implementiert [REI08]. Zur Erweiterung und Absicherung dieser Modelle werden zurzeit in internationalen Vorhaben, wie z. B. im OECD/NEA-THAI-Projekt Integralversuche mit Rekombinatoren verschiedener Hersteller durchgeführt. Da die Modellentwicklung, basierend auf integralen, überwiegend instationären Daten, schwierig ist, wird am Forschungszentrum Jülich (FZJ) die kleinskalige Versuchsanlage REKO-3 betrieben, um anhand von Einzel-Effekt-Versuchen zur Reaktionskinetik eine Datenbasis zur Modellentwicklung bereitzustellen [DRI05, SCW09]. Diese Untersuchungen im kleinen Maßstab und unter Zwangskonvektion sind prinzipiell auf reale Rekombinatoren übertragbar, eine abschließende Bestätigung an Integralversuchen ist jedoch erforderlich.

Auf dieser Basis wurde bereits von Böhm [BOE06] REKO-Direkt, ein analytisches Modell für Rekombinatoren der AREVA-Bauart, erstellt und validiert, welches die Wärme- und Stofftransportprozesse insbesondere im Katalysatoreinschub detailliert abbildet. Der für dieses Modell abgeleitete Sherwood-Ansatz lässt sich jedoch nicht auf die in der vorliegenden Arbeit betrachteten zylindrischen Katalysatorelemente übertragen.

3 Theoretische Grundlagen

Zur Untersuchung und Verbesserung der Effektivität des Gebäudekondensators ist es erforderlich, die auftretenden Phänomene modellmäßig zu erfassen. Neben der Wandkondensation in Anwesenheit von Inertgas sowie der heterogenen Reaktion an einem Katalysator gehört auch die Beschreibung der turbulenten Strömung um die Katalysator- bzw. Kondensatorelemente dazu. Im Folgenden werden diese Aspekte näher beschrieben.

3.1 Turbulente reaktive Strömungen

Die vollständige Beschreibung turbulenter, reagierender Strömungen basiert auf den Bilanzgleichungen für Masse, Impuls und Energie. Ausführliche Herleitungen finden sich z. B. bei Bird [BIR02] oder Schlichting [SCL97]. Der Strömungszustand eines Fluids wird durch die Massen- und Impulsbilanz (Navier-Stokes Gleichungen) beschrieben, die Energiegleichung berücksichtigt Wärmetransportvorgänge. Die Berechnung reagierender Strömungen erfordert schließlich die Bilanzierung der Speziesmassen zur Berechnung ihres Transports im Strömungsfeld. Die lokalen Werte von Dichte, Druck und Temperatur, Enthalpie und innerer Energie können durch Zustandsgleichungen miteinander in Bezug gesetzt werden.

Gesamtmassenbilanz

Die Bilanz der Gesamtmasse (Kontinuitätsgleichung) lautet in Indexnotation und unter Verwendung der Einsteinschen Summationsregel:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i) = 0. \quad (3.1)$$

Impulsbilanz

Die Impulsbilanz ergibt sich aus dem zweiten Newton'schen Gesetz (Änderungsrate des Impulses gleich der Summe der äußeren Kräfte):

$$\frac{\partial \rho u_j}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i u_j) = -\frac{\partial p}{\partial x_j} + \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_i} + \sum_k f_k. \quad (3.2)$$

Hierbei sind f_k die äußeren Feldkräfte, wie z. B. Gravitation, und τ_{ij} der viskose Spannungstensor, der den molekularen Transport beschreibt [DUR06] und für Newton'sche Fluide definiert ist als:

$$\tau_{ij} = \mu \left[\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right] - \left(\frac{2}{3} \mu - \kappa \right) \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \delta_{ij}. \quad (3.3)$$

Hierbei sind μ die dynamische Viskosität und δ_{ij} das Kronecker Symbol. Die Dehnungviskosität κ spielt nur bei Mehrphasenströmungen eine Rolle und wird im Folgenden vernachlässigt. Obwohl in der Impulsgleichung kein explizit von chemischen Reaktionen abhängiger Term auftritt, üben diese über die Temperaturabhängigkeit der dynamischen Viskosität und der Dichte mitunter großen Einfluss auf die Impulsbilanz aus. Hieraus resultiert für reaktive Strömungen eine weitaus stärkere Variation der Reynolds-Zahl verglichen mit isothermen Strömungen.

Energiebilanz

Nach dem ersten Hauptsatz der Thermodynamik ist die Änderung der inneren Energie eines Fluid-Volumens gleich der Summe der zu- und abgeführten Wärme und der am Fluid-Volumen verrichteten Arbeit. Demnach gilt für die Bilanz der inneren Energie e :

$$\frac{\partial \rho e}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i e) = \frac{\partial j_i^q}{\partial x_i} + \frac{\partial u_i}{\partial x_j} (\tau_{ij} - p \delta_{ij}) + \rho \sum_{k=1}^N Y_n f_{n,i} V_{n,i} + \dot{q}_R + \dot{w}_R \Delta h_R. \quad (3.4)$$

Der dritte Term auf der rechten Seite beinhaltet die Erwärmung durch viskose Kräfte ($V_{n,i}$: Diffusionsgeschwindigkeiten der Spezies n in Richtung i) und die Einwirkung äußerer Feldkräfte ($f_{n,i}$: Volumenkräfte, die auf die Spezies n in Richtung i wirken) am Volumenelement. Bei Gasen ist dieser Term von untergeordneter Bedeutung [DUR06] und wird daher im Folgenden vernachlässigt.

Der vorletzte Summand auf der rechten Seite in Gl. 3.4 ist ein Quellterm \dot{q}_R , der die Energiezufuhr durch Fernwirkung (z. B. Wärmestrahlung) berücksichtigt. Der letzte Term beschreibt die Energiefreisetzung aufgrund von chemischen Reaktionen mit der Reaktionsrate \dot{w}_R und der Reaktionsenthalpie Δh_R . Der Term $\frac{\partial u_i \tau_{ij}}{\partial x_j}$ beschreibt den Energietransport aufgrund von viskosen Reibungskräften. Der Wärmestrom j_i^q setzt sich aus dem Wärmestrom $j_i^{q,c}$ gemäß dem Fourier'schen Wärmeleitungsgesetz (3.6) und einem Enthalpiestrom $j_i^{q,d}$ auf Grund der Diffusion von Spezies unterschiedlicher Enthalpie h_n (3.7) zusammen:

$$j_i^q = j_i^{q,c} + j_i^{q,d} \quad (3.5)$$

$$j_i^{q,c} = -\lambda \frac{\partial T}{\partial x_i} \quad (3.6)$$

$$j_i^{q,d} = \sum_{n=1}^N h_n j_i^n \quad (3.7)$$

Die Diffusion von Enthalpie aufgrund von Massenbruch-Gradienten (Dufour-Effekt) spielt hier nur eine untergeordnete Rolle und wird daher vernachlässigt.

Die spezifische Enthalpie steht nach

$$h = e + \frac{p}{\rho} \quad (3.8)$$

mit der inneren Energie e in Zusammenhang und kann für ein System aus N Spezies berechnet werden zu

$$h = \sum_{n=1}^N h_n Y_n. \quad (3.9)$$

Die spezifische Enthalpie h_n einer Spezies n berechnet sich aus der Summe ihrer spezifischen Standardbildungsenthalpie $h_{f,n}^0$ und ihrer spezifischen fühlbaren Enthalpie:

$$h_n = h_{f,n}^0 + \int_{T^0}^T c_{p,n}(T) dT. \quad (3.10)$$

Hierbei ist $c_{p,n}$ die spezifische Wärmekapazität der Spezies n bei konstantem Druck.

Spezies Massenbilanzen

In einem System aus N Spezies gilt je eine Bilanzgleichung für die Massen aller chemischen Komponenten bzw. ihres Massenbruchs Y_n :

$$\frac{\partial \rho Y_n}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i Y_n) = \frac{\partial j_i^n}{\partial x_i} + \dot{w}_n. \quad (3.11)$$

Der Diffusionsstrom j_i^n lässt sich unter Vernachlässigung der Diffusion aufgrund von Temperaturgradienten (Soret-Effekt) mit dem Fick'schen Gesetz beschreiben:

$$j_i^n = - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho D_n \frac{\partial Y_n}{\partial x_i} \right). \quad (3.12)$$

Hierbei ist D_n der molekulare Diffusionskoeffizient der Spezies n im Gemisch. Der Term \dot{w}_n beschreibt die Reaktionsrate der Spezies n .

Zustandsgleichungen

Die thermische Zustandsgleichung setzt die Zustandsgrößen p, ρ, T und Y_n miteinander in Beziehung und kann für ideale Gase wie folgt formuliert werden:

$$p = \rho R T \sum_{n=1}^N \frac{Y_n}{M_n}. \quad (3.13)$$

Hierbei beträgt die ideale Gaskonstante $R = 8.3145 \frac{\text{J}}{\text{molK}}$, M_n bezeichnet die molare Masse der Spezies n .

Die kalorischen Zustandsgleichungen koppeln die spezifische innere Energie e und die spezifische innere Enthalpie h mit der Temperatur T . Für ein ideales Gas lauten sie mit c_v als spezifischer Wärmekapazität bei konstantem Volumen und c_p als spezifischer Wärmekapazität bei konstantem Druck:

$$de = c_v \cdot dT, \quad (3.14)$$

$$dh = c_p \cdot dT. \quad (3.15)$$

3.2 Heterogene Katalyse

Unter Katalyse versteht man die Veränderung der Reaktionsgeschwindigkeit einer chemischen Reaktion im Beisein eines Hilfsstoffs, eines sogenannten Katalysators. Treten Edukte und Katalysator in verschiedenen Zustandsformen auf, so spricht man von heterogener Katalyse. Das Wirkungsprinzip der Katalyse ist in Abbildung 3.1 skizziert. Eine chemische Reaktion kann nur dann selbstständig ablaufen, wenn die Gesamtenthalpie der Produkte unterhalb der der Ausgangsstoffe liegt, das heißt, dass die Reaktionsenthalpie (Δh_R) negativ ist. Zum Start der Reaktion muss zusätzlich eine sog. Aktivierungsenergie E_a durch das System aufgebracht werden. Die katalytisch aktive Oberfläche eröffnet den Reaktanden einen zweiten, auf Grund seiner niedrigeren Aktivierungsenergie E_a^{kat} , schnelleren Reaktionsweg.

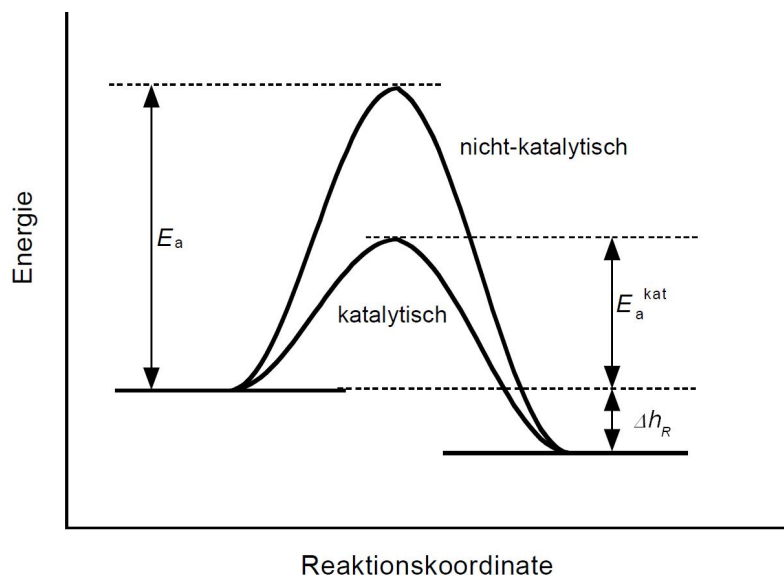


Abb. 3.1: Prinzip katalytischer Reaktionen [BEH99].

Hierbei beeinflusst der Katalysator nicht die Lage des thermodynamischen Gleichgewichts, sondern ausschließlich die Reaktionsgeschwindigkeit des Systems.

Speziell für die katalytische Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff bedeutet dies, dass die Reaktion bereits bei Raumtemperatur und geringen Konzentrationen, also weit unterhalb der unteren Zündgrenze von ca. 560 °C bei 4 Vol.-% H_2 in Luft [DRI05], ablaufen kann. Zur Vergrößerung der aktiven Oberfläche wird häufig ein poröser sogenannter Washcoat (z. B. Al_2O_3) auf das Trägermaterial aufgetragen, auf den dann der eigentliche Katalysator aufgebracht wird.

Heterogene Katalyseprozesse können in folgende charakteristische Teilschritte aufgeteilt werden [BEH99]:

- (1) Konvektiver und molekularer Transport der Reaktanden in der Strömung,
- (2) Diffusion der Reaktanden aus der Gasphase zum Katalysator,
- (3) Porendiffusion zu freien katalytisch aktiven Zentren,
- (4) Adsorption, Reaktion zwischen den adsorbierten Reaktanden, Desorption,
- (5) Diffusion der Produkte in die Gasphase.

Dies ist anhand des Verlaufs der Konzentration c_n eines Reaktanden in Abbildung 3.2 dargestellt. Die Indizes kennzeichnen hierbei die Konzentration in der Strömung (b), an der Katalysatoroberfläche (s) sowie die minimale Konzentration (w).

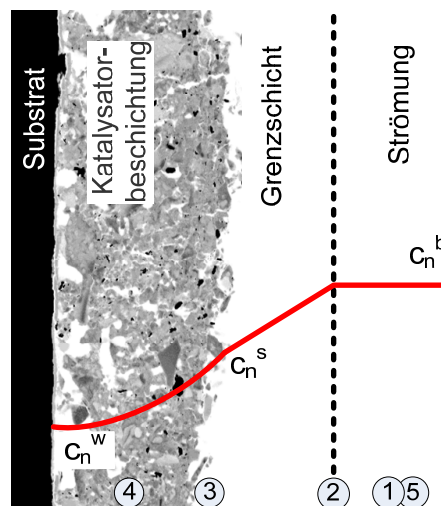


Abb. 3.2: Konzentrationsverlauf der Reaktanden

Die Beschreibung des äußeren Transports der Reaktanden und Produkte erfolgt mit den zuvor beschriebenen Navier-Stokes'schen Gleichungen. Der innere Stofftransport, auch Porendiffusion genannt, wird analog zum Fick'schen Gesetz (Gl. 3.12) abgebildet. Für die Beschreibung des Diffusionskoeffizienten sind verschiedene Modi zu berücksichtigen, die insbesondere vom Verhältnis des Porendurchmessers d_p , der mittleren freien Weglänge λ und dem Durchmesser der Moleküle d_M abhängen:

- Normaldiffusion ($d_p > \lambda$)
- Knudsen-Diffusion ($d_p < \lambda$)
- Konfigurable Diffusion ($d_p \sim d_M$)

Der Diffusionskoeffizient nimmt hierbei mit sinkendem Porendurchmesser ab.

Für die Reaktion an der katalytisch aktiven Oberfläche können prinzipiell zwei mögliche Reaktionspfade unterschieden werden. Beim Langmuir-Hinshelwood-Mechanismus (LH) reagieren zwei adsorbierte Teilchen miteinander. Bei der Eley-

Rideal-Reaktion (ER) hingegen reagiert ein Teilchen aus der Gasphase beim Auftreffen auf die Oberfläche mit einem dort adsorbierten Teilchen. Während beim LH-Mechanismus die Reaktionsenthalpie nahezu vollständig an der Oberfläche frei wird, verlassen beim ER-Mechanismus die Produktspezies die Oberfläche bevor eine vollständige Energieabgabe auf der Oberfläche stattgefunden hat [BEH99].

Im betrachteten H_2/O_2 /Platin- bzw. auch im H_2/O_2 /Palladium-System gehören alle Elementarreaktionen zum LH-Typ [BEH99]. Abbildung 3.3 zeigt den Reaktionsmechanismus für die Wasserstoffoxidation an Platin für das vereinfachte Schema mit sechs Spezies nach Hellsing und Hsu [BEH99]. Hierbei bezeichnet die Klammer (s) an Symbolen eine adsorbierte Spezies und Pt(s) ein freies, zur Adsorption zur Verfügung stehendes katalytisch aktives Zentrum.

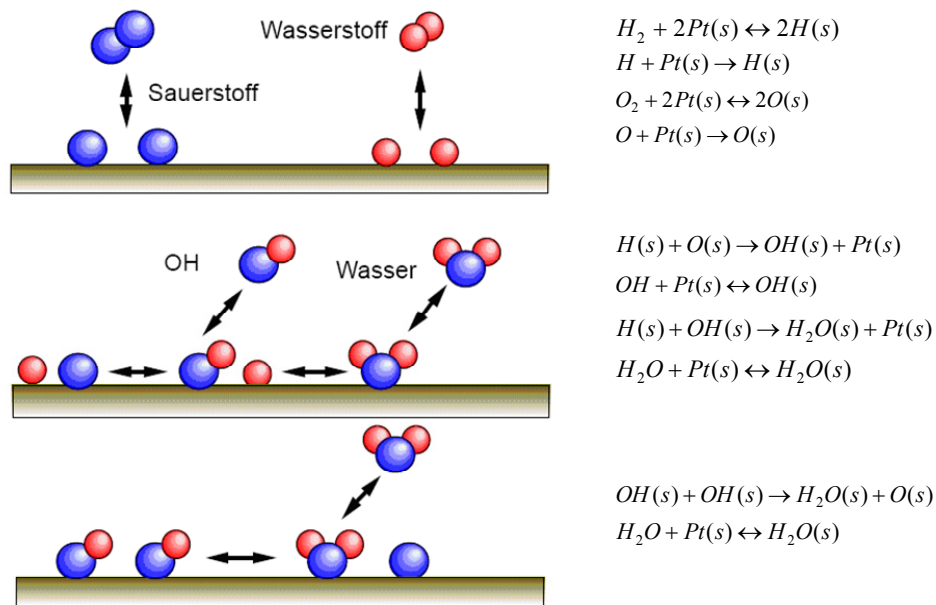


Abb. 3.3: Einzelschritte des Oberflächenmechanismus für die Wasserstoffoxidation auf Platin mit sechs Spezies nach Hellsing und Hsu [BEH 99]

Die lokale Reaktionsrate hängt insbesondere von der Temperatur und der Gasphasenkonzentration c_n der Reaktanden an den aktiven Zentren ab. Sie wird für die einzelnen Elementarreaktionen mittels eines Arrhenius-Ansatzes beschrieben:

$$\dot{i}'' = k_0 \cdot e^{-\frac{E_a}{RT}} \cdot \prod_n c_n^{\nu_n} . \quad (3.16)$$

Hierbei sind die Geschwindigkeitskonstante k_0 und die Aktivierungsenergie E_a Modellkonstanten, ν_n der stöchiometrische Koeffizient. Sie sind spezifisch für die jeweilige Elementarreaktion.

3.3 Wandkondensation

Ist die Temperatur an einer Wandoberfläche niedriger als die Sättigungstemperatur des angrenzenden Dampfes, so herrscht an der Wandoberfläche kein Phasengleichgewicht und Dampf wird kondensiert. Das Kondensat unterkühlt durch den Kontakt mit der Wand, so dass sich an der Kondensatoberfläche neuer Dampf nieder schlägt. Die Kondensation von Dampf ist daher immer mit Stofftransport zur Phasengrenze verbunden [BAE06]. Der Prozess der Kondensation ist hierbei in Einzelschritte unterteilbar, bei denen mehrere Teilwiderstände überwunden werden müssen. Zunächst gelangt Dampf infolge der Strömung (konvektiver Transport) und Molekularbewegung (diffusiver Transport) zur Phasengrenze. Im nächsten Schritt kondensiert der Dampf und die freiwerdende Kondensationswärme wird durch Wärmeleitung und Konvektion im Kondensat an die Wand abgeführt. Das Kondensat kann als 10-100 μm dicker Film [ROS09] oder in Form von Tropfen ablaufen. Ob Film- oder Tropfenkondensation vorherrscht, hängt zum einen vom Neigungswinkel der Wand und zum anderen davon ab, ob die Wand vollständig benetzbar ist. Da ein geschlossener Kondensatfilm einen höheren Wärmeübergangswiderstand darstellt, ist bei Tropfenkondensation mit bis um den Faktor 8 höheren Wärmeströmen bzw. Kondensationsraten zu rechnen [BAE06].

Prinzipiell unterscheidet man bei der Beschreibung von Wandkondensation zwei Fälle. Während bei der Kondensation von reinem Dampf der Wärmeleitwiderstand im Kondensatfilm die Kondensationsrate limitiert, ist bei Kondensation aus einem Gasgemisch mit nichtkondensierbaren Gasen der Stofftransportwiderstand für die Diffusion des Dampfes in der Gasphase entscheidend [KAR88]. Nichtkondensierbare Gase werden auch als Inertgase bezeichnet und bei den im Störfall zu erwartenden Temperaturen nicht verflüssigt. Schon geringe Inertgaskonzentrationen reduzieren den Wärmeübergangskoeffizienten und damit auch die Kondensationsrate erheblich. Dieser Effekt zeigt sich vor allem bei geringen Strömungsgeschwindigkeiten [KAR96].

Abbildung 3.4 verdeutlicht die prinzipiellen Unterschiede zwischen Kondensation von reinem Dampf und Kondensation in Anwesenheit von Inertgasen.

Bei der Kondensation reinen Dampfes liegt die Temperatur an der Phasengrenzfläche T_i geringfügig unterhalb der Sättigungstemperatur $T_s(p_{H_2O})$, so dass ständig Dampf an der Phasengrenze kondensiert und durch neuen nachströmenden Dampf ersetzt wird. Nusselt (1916) erstellte durch Bilanzierung der Wassermasse im Film und ihres Wärmetransportwiderstands eine einfache Theorie, die „Nusselt’sche Wasserhauttheorie“ zur Berechnung des Wärmeübergangs bei der laminaren Filmkondensation an senkrechten und geneigten Wänden sowie an Rohren.

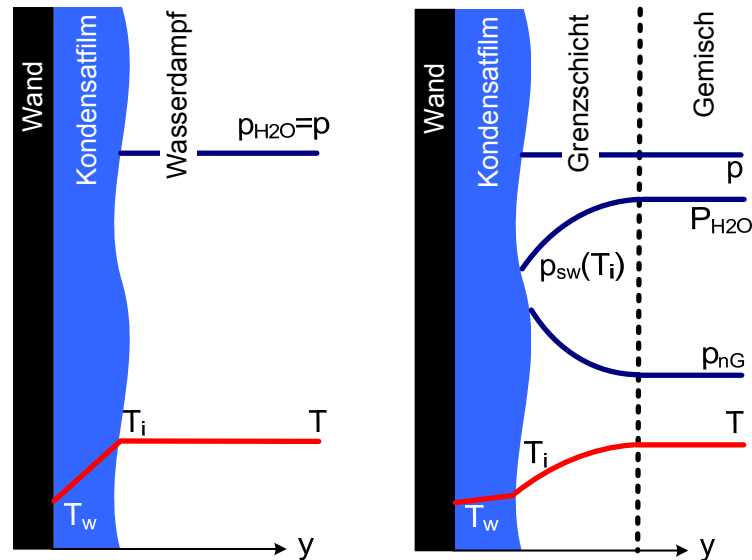


Abb. 3.4: Bilanzen für die Kondensation von Wasserdampf ohne (links) und in Anwesenheit nichtkondensierbarer Gase (rechts) [FET98]

Kondensiert Dampf in Anwesenheit eines nichtkondensierbaren Gases, so muss er durch das Gas an die Phasengrenze diffundieren. Dazu ist ein Partialdruckgefälle zur Phasengrenze hin erforderlich. Entsprechend fällt der Partialdruck des Dampfes p_{H_2O} auf den geringeren Wert $p_{H_2O,s}(T_i)$ ab. Mit dem konvektiven Transport des Dampfes zur Phasengrenzfläche wird auch das Inertgas dorthin transportiert und reichert sich an, d. h. der Partialdruck des Inertgases p_{nG} nimmt in Richtung der Phasengrenze zu. Diese ist für Inertgase undurchlässig und wird daher als semipermeable Phasengrenze bezeichnet. Mit zunehmender Inertgaskonzentration steigt der Widerstand der Grenzschicht für die Diffusion des Wasserdampfes zur Phasengrenze, so dass der Dampfmassenstrom zur Phasengrenze sinkt. Da sich bei geringerem Stoff- und Wärmestrom und bei gleich bleibendem Wärmetransportwiderstand im Kondensatfilm die Temperaturdifferenz in der Wasserschicht reduziert, sinkt die Temperatur T_i an der Phasengrenze ab. Sie wird sich so einstellen, dass der sich aus dem Wärmeübergangskoeffizienten und der Temperaturdifferenz ergebende Wärmestrom in dem Gasgemisch dem sich einstellenden Wärmestrom im Kondensatfilm entspricht. Nach de la Rosa [ROS09] kann im Allgemeinen davon ausgegangen werden, dass bei Anwesenheit von Inertgasen die Oberflächentemperatur des Kondensatfilms nur geringfügig über der Wandtemperatur liegt. Da an der Phasengrenze thermisches Gleichgewicht vorliegt, entspricht der Wasserdampfpartialdruck an der Phasengrenze dem Sättigungsdampfdruck $p_{sw}(T_i)$. Die Sättigungstemperatur an der Phasengrenze T_i kann dabei je nach Inertgaskonzentration

beträchtlich unter der zum Druck p gehörenden Sättigungstemperatur $T_s(p_{H_2O})$ liegen [BAE06]. Durch das Inertgas wird also die treibende Temperaturdifferenz für den Wärmetransport zwischen Phasengrenzfläche und Wand und damit auch der Wärmeübergangskoeffizient herabgesetzt [SCL84].

Wandkondensation in Anwesenheit von Inertgasen kann mit dem Stefan'schen Gesetz für die einseitige Diffusion beschrieben werden. Betrachtet man die Phasengrenze als dampfdurchlässige Wand, so tritt ein konvektiver Dampftransport senkrecht zur Phasengrenzfläche auf. Dieser bewirkt eine dünnere Spezies-Grenzschicht und damit einen verbesserten Stofftransport. Bei hohen Dampfkonzentrationen führt daher die Analogie zwischen Wärme- und Stofftransport zur Unterschätzung des Wärmeübergangskoeffizienten. Es wurden Korrekturfaktoren, z. B. von Bird [BIR02] oder die sog. Ackermann-Korrektur [ACK68], entwickelt um diesen Effekt zu berücksichtigen.

Aufgrund des Temperaturgradienten in der Grenzschicht kann lokal ein übersättigter Zustand auftreten, der zur Volumenkondensation in Form feiner Tröpfchen führt. Die Konzentration der Tröpfchen nimmt hierbei in der Nähe der Phasengrenze zu. Die Freisetzung der latenten Wärme im Gas führt zu höheren Gemischtemperaturen und beeinflusst die Randbedingungen bei der Kontaktkondensation. Generell führt Volumenkondensation zu einem höheren Wärmeübergang. Ihr Einfluss zeigt sich vor allem bei Kondensation aus gesättigten und übersättigten Gemischen und hohen Temperaturunterschieden ($>70K$) zwischen Fluid und Wand [ROS09]. Die modellmäßige Beschreibung ist schwierig und erfolgt meist in Form empirischer Korrelationen.

4 Experimentelle Daten

4.1 Versuche zur Wandkondensation

Die Versuchsanlage CONAN (CONdensation with Aerosols and Non-condensables) wird von der Universität Pisa (Italien) betrieben. An CONAN gewonnene experimentelle Daten wurden im Rahmen des Condensation Benchmark [AMB07] des europäischen Netzwerks SARNET (Severe Accident Research Network) den Partnern zur Verfügung gestellt.

4.1.1 Beschreibung der Versuchsanlage CONAN

Der Versuchstand CONAN besteht im Wesentlichen aus drei verschiedenen Kreisläufen (vgl. Abb. 4.1). Im primären Kreislauf wird das Wasserdampf/Luft-Gemisch mittels eines regelbaren Gebläses umgewälzt und durch den Versuchsabschnitt – einen vertikalen Strömungskanal mit quadratischem Querschnitt der Kantenlänge 0,34 m und einer Länge von 2 m – geführt. Über ein Ventil kann Dampf aus einem Verdampfer mit einer maximalen Leistung von 60 kW in den primären Kreislauf eingespeist werden. Eine Seitenfläche des Rechteckkanals besteht aus einer 45 mm starken Aluminium-5083 Platte. Mittels einer Pumpe zirkuliert im sekundären Kühlkreislauf im Gegenstrom Wasser durch einen rechteckigen, 5 mm tiefen Kanal auf der Rückseite der Al-Platte und stellt somit ein Wandtemperaturprofil ein. Ein dritter Kreislauf führt die Wärme schließlich an eine externe Senke ab, indem kaltes Wasser in den Mischbehälter eingespeist und warmes Wasser abgezogen wird. Der Versuchsabschnitt ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Die Abmessungen des Versuchsabschnitts sind so gewählt, dass über die gesamte Lauflänge von quasi konstanten Werten in der Kernströmung ausgegangen werden kann. Die zylindrische Umhausung des Kanals ermöglicht primärseitig Systemdrücke von bis zu 3 bar Überdruck. Nach außen hin ist die Anlage isoliert, so dass die gekühlte Wand die einzige Wärmesenke darstellt. Zur Beruhigung und Homogenisierung strömt das Gemisch vor Eintritt in den rechteckigen Strömungskanal durch drei Lagen, die aus je 35 mm dicken wabenförmigen Platten mit einem Zelldurchmesser von 3 mm bestehen.

Als Randbedingungen werden der primäre Volumenstrom mittels eines Wirbelzählers sowie die Eintrittstemperatur und relative Feuchte mit Hilfe eines Psychrometers gemessen. Ein Druckaufnehmer ermittelt den Druck im Primärkreislauf.

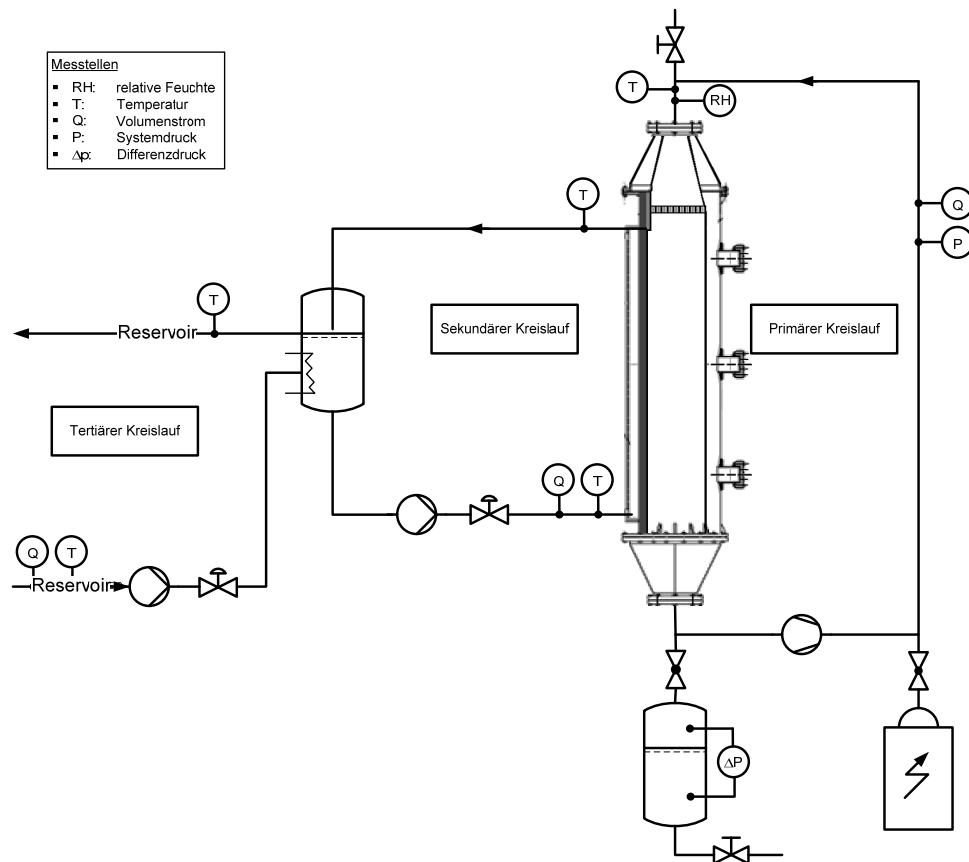


Abb. 4.1: Schematischer Aufbau der CONAN-Anlage [BUC08]

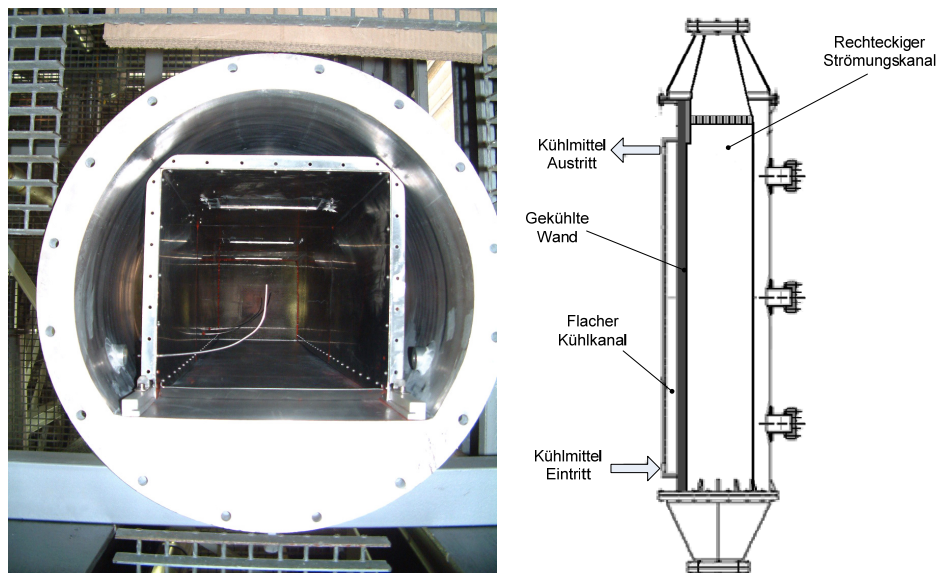


Abb. 4.2: a) Strömungskanal v.u. b) schematischer Aufbau des Versuchsabschnitts [AMB08]

Entlang der Lauflänge der Al-Platte sind im Abstand von 250 mm an verschiedenen Positionen Ni-CrNi Thermoelemente eingebracht, über die das Temperaturprofil in der Platte und die zugehörigen Wandwärmeströme ermittelt werden. Die Bulk-Temperatur wird an vier verschiedenen Positionen im Strömungskanal ebenfalls mit Ni-CrNi Thermoelementen gemessen.

Das Kondensat wird am Ende der Al-Platte über eine Rinne abgezogen und einem externen Sammler zugeführt, in dem die integrale Kondensationsrate mittels eines Differenzdruckaufnehmers gemessen wird.

Sekundärseitig werden Ein- und Austrittstemperatur über Thermoelemente sowie der Kühlmittelmassenstrom mittels eines Coriolis-Massendurchflussmessers ermittelt, um eine Bilanz über die abgeführte Wärme zu ermöglichen.

Die Messunsicherheiten der verschiedenen Messmethoden sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Zusätzliche Unsicherheiten sind nach Ambrosini [AMB08] durch das quasi-stationäre Verhalten des Prüfstands und die zeitliche Mittelung der relevanten Größen zu erwarten, da einige Prozessgrößen über den Mittelungszeitraum (ca. 1000 s) zeitlich fluktuieren.

Messgröße	Messmethode	Unsicherheit
Primärseitiger Volumenstrom	Wirbelzähler	$\pm 21 \text{ m}^3/\text{h}$ entsprechend $\pm 0,05 \text{ m/s}$ im Versuchsabschnitt
Sekundärseitiger Massenstrom	Coriolis-Massendurchflussmesser	$\pm 3\%$
Temperaturmessung	Ni-CrNi Thermoelemente Widerstandssensoren (RTD)	$\pm 0,25 \text{ }^\circ\text{C}$
Wandwärmestrom	Ni-CrNi Thermoelemente	max. $\pm 0,10 \text{ }^\circ\text{C}$ entsprechend $\pm 700 \text{ W/m}^2$
Feuchte/Eintrittstemperatur	Psychrometer / Widerstandssensoren (RTD)	max. $\pm 0,10 \text{ }^\circ\text{C}$
Integrale Kondensationsrate	Differenzdruckaufnehmer	max. $\pm 1\%$

Tab. 4.1: CONAN-Anlage: Abschätzung der Messunsicherheiten [AMB08].

4.1.2 CONAN-Daten zur Wandkondensation in Anwesenheit von Inertgas

Die CONAN-Anlage eignet sich aufgrund ihrer einfachen Geometrie und ausreichenden Instrumentierung gut für eine erste Validierung des Wandkondensationsmodells. Neben integralen Werten, wie z. B. der Kondensationsrate, stehen auch lokale Werte der Wandtemperatur sowie des Wandwärmestroms zur Verfügung. Die erforderlichen Randbedingungen können aus den gemessenen Eintrittswerten

ermittelt werden. Abbildung 4.3 zeigt schematisch die Anordnung der Messstellen im Versuchsabschnitt der Anlage sowie die experimentellen Randbedingungen. Die zur Verfügung stehenden Messdaten sind in Tabelle 4.2 zusammengefasst.

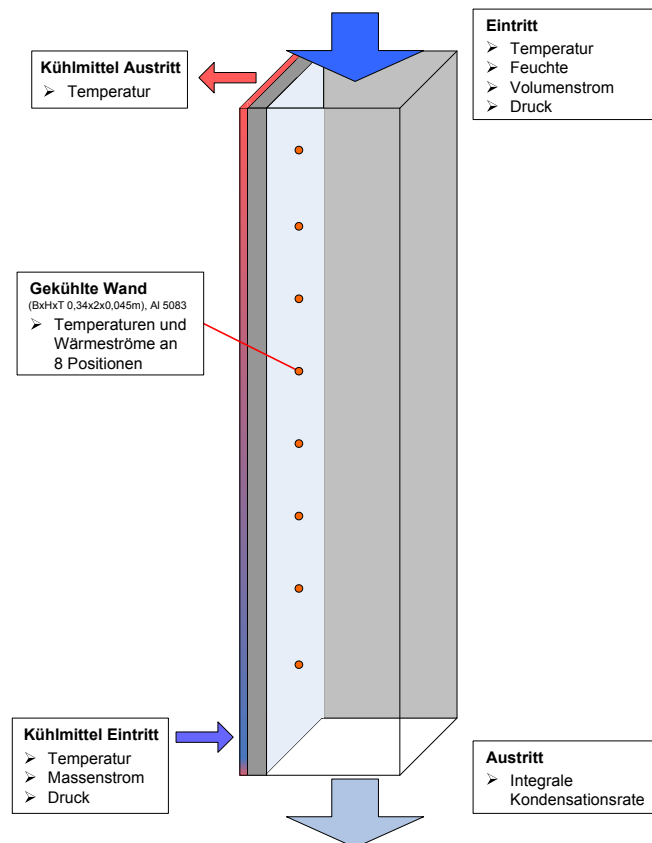


Abb. 4.3: CONAN Messwerte und Randbedingungen

Testreihe	v [m/s]	T _{in} [°C]	rel. Feuchte [%]	Druck [Pa]
10 kW Verdampferleistung	1,5-3,5	~80	~1	101325

Tab. 4.2: CONAN-Datenbank für detaillierte Daten zur Wandkondensation in Anwesenheit von Inertgas an einer vertikalen Wand [AMB08]

4.2 Versuche zur Reaktionskinetik

In Jülich wird seit 1995 an Katalysatorelementen zur flammlosen Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff geforscht. Die vorhandene experimentelle Datenbasis wurde vor allem in Hinblick auf die Entwicklung mechanistischer PAR Modelle für Störfallcodes generiert. Insbesondere plattenförmige Katalysatorelemente, wie sie in Rekombinatoren der AREVA-Bauart verwendet werden, wurden von Drinovac [DRI05] und darauf aufbauend von Schwarz [SCW09] intensiv untersucht. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die experimentelle Datenbank um Daten zur Reaktionskinetik an zylindrischen Katalysatorelementen erweitert. In diesem Zusammenhang wurde unter anderem der Einfluss der Kühlung des Katalysatorelements auf die Reaktionskinetik näher betrachtet.

4.2.1 Beschreibung der Versuchsanlage REKO-3

Der kleinskalige Prüfstand REKO-3 [DRI05, SCW09] bildet einen Ausschnitt aus einem PAR der AREVA-Bauart ab. Der Versuchsstand ist zwangsdurchströmt und ermöglicht somit die Untersuchung des stationären Betriebsverhaltens von Katalysatorelementen unter definierten Randbedingungen.

Der prinzipielle Aufbau der Versuchsanlage ist in Abbildung 4.4 dargestellt. Der Prüfstand besteht im Wesentlichen aus einem vertikal stehenden Rechteckkanal (2 mm Stahlblech), der auf einem Tisch montiert ist. Der Strömungsquerschnitt beträgt $46 \times 146 \text{ mm}^2$. Das Gasgemisch wird über einen Mischer von unten zugeführt und durchströmt den Kanal vertikal von unten nach oben. Nach einer Einlauf- und Mischstrecke zur Beruhigung der Strömung und zur Homogenisierung des Gasgemisches beginnt der Reaktionsabschnitt, in den die Katalysatorelemente eingesetzt werden. Zwecks Analyse der Gaszusammensetzung sind seitlich im Probenmodul in verschiedenen Höhen Messgasentnahmestellen zur Entnahme eines Teilgasstroms angeordnet. Dieser Teilstrom wird durch eine Messgassonde einem Wasserstoff- und Sauerstoffanalysator zugeführt. Über den Kamin verlassen die Abgase das Labor. Drei getrennt gesteuerte Luftregler mit einer maximalen Durchströmung von $6 \text{ m}_n^3/\text{h}$ ermöglichen eine Strömungsgeschwindigkeit von bis zu $0,8 \text{ m/s}$ bei Raumtemperatur bzw. $1,0 \text{ m/s}$ bei einer Eintrittstemperatur von 70°C . Die Luft kann vor der Mischkammer mit einer Rohrpatrone auf eine Eintrittstemperatur von bis zu 70°C aufgeheizt werden. Heizbänder an den weiterführenden Rohrleitungen ermöglichen eine weitere Aufheizung auf bis zu 110°C . Der Wasserstoffregler ist mit $2,0 \text{ m}_n^3/\text{h}$ so dimensioniert, dass bei einer Durchströmungsgeschwindigkeit von 1 m/s und

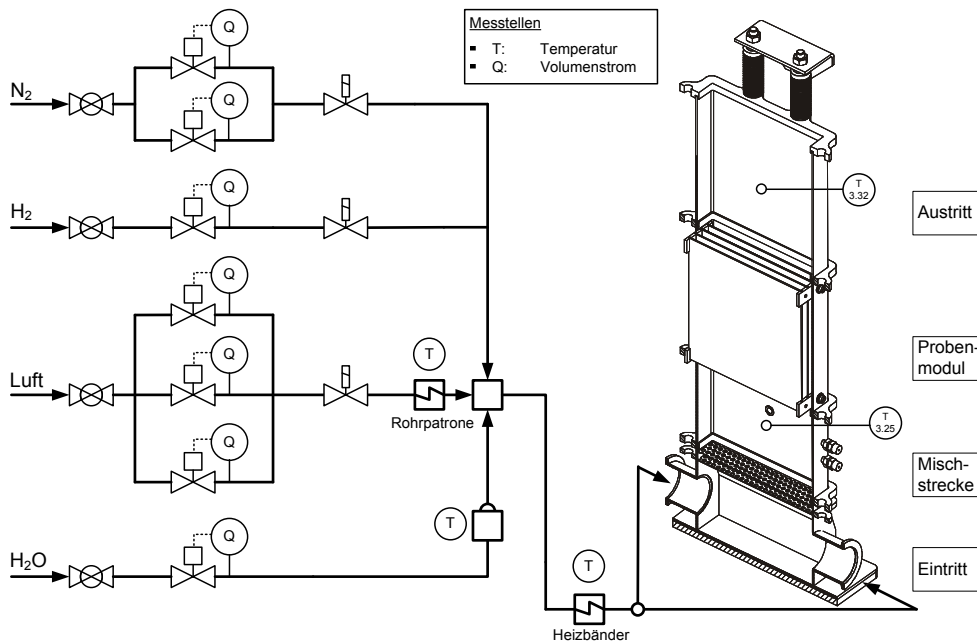


Abb. 4.4: REKO-3: Fließbild und Messstellen für die Randbedingungen

einer Temperatur von 70°C ein Gasgemisch mit 6 Vol.-% H_2 erzeugt werden kann. Mittels zweier Stickstoffregler mit einem maximalen Durchfluss von $2\text{ m}_n^3/\text{h}$ und $6\text{ m}_n^3/\text{h}$ kann ebenfalls die Sauerstoffkonzentration im Gasgemisch eingestellt und so auch das Betriebsverhalten von Rekombinatoren bei Sauerstoffverarmung untersucht werden. Ein Massendurchflussregler für Flüssigkeiten mit einem maximalen Durchsatz von 4 l/h sorgt für einen konstanten Wasserstrom, der dem Verdampfer zugeführt wird. Vier Rohrpatronen mit einer Nennleistung von jeweils 315 W in Kombination mit einer Heizmanschette ermöglichen einen Wasserdampfgehalt von 60 Vol.-% bei einer Strömungsgeschwindigkeit von $0,25\text{ m/s}$ bzw. 20 Vol.-% bei $0,8\text{ m/s}$. Die Dampfmenge wird über die Oberflächentemperatur einer Heizpatrone geregelt. Da im stationären Betrieb die Wassermenge im Verdampfer konstant gehalten wird, gibt der Massendurchflussregler den Dampfmengenstrom an.

Die Steuerung und Regelung der Anlage sowie die Messdatenerfassung erfolgt über das Prozessautomatisierungssystem DeltaV der Fa. Emerson Process Management.

Zur Gastemperaturmessung im Eintritt und im Austritt des Prüfstands werden $1,5\text{ mm}$ starke Ni-CrNi-Thermoelemente der Firma Rössel verwendet. Die Eintrittstemperatur (TRC 3.25) dient gleichzeitig als Istwert der Temperaturregelung, die die Leistung der Rohrpatrone steuert.

Zur Analyse des Gasgemischs sind im Probenmodul sowie im Gasein- und -austrittsbereich gasdicht verschließbare Durchführungen vorhanden. Durch diese kann eine

Messgassonde eingebracht und Messgas zur Analyse entnommen werden. Der Aufbau der Gasanalytik ist in Abbildung 4.5 schematisch dargestellt.

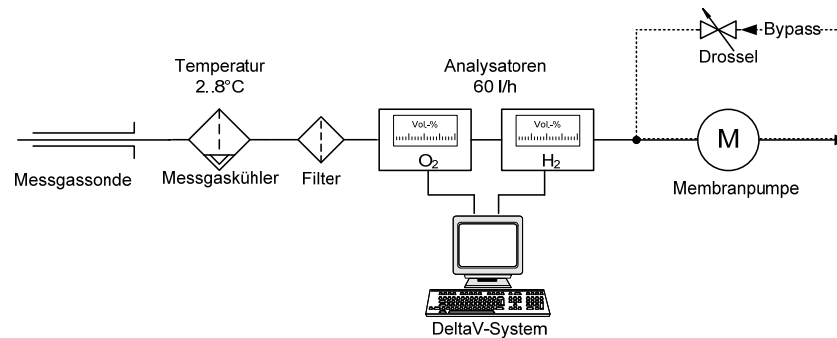


Abb. 4.5: Schematischer Aufbau der Messgasanalytik

Das heiße Messgas (25-300°C) wird über eine Sonde mithilfe einer Membranpumpe angesaugt und durch einen Gaskühler gezogen. Im Kühler kondensiert der im Messgas vorhandene Wasserdampf bei 2-8°C weitgehend aus. Um den Analysegeräten ein möglichst reines, partikel- und wasserdampffreies Gas zuzuführen, ist als Filterelement eine GoreTEX-Membran vorgeschaltet. Der Bypass gleicht betriebsbedingte Durchflussschwankungen der Messgaspumpe aus, während die Drossel dafür sorgt, dass kontinuierlich ein konstanter Volumenstrom durch die beiden Analysatoren strömt, wodurch die Messgenauigkeit der Messapparatur gewährleistet wird. Die Messverfahren basieren beim Sauerstoffanalysator auf dem Prinzip des Paramagnetismus und beim Wasserstoffanalysator auf einem Wärmeleitfähigkeitssensor.

Die Gasanalytik wird mit dem Nullgas Stickstoff sowie einem Prüfgasgemisch von 10 Vol.-% H₂ / 90 Vol.-% N₂ bzw. trockener Luft (20,95 Vol.-% O₂, 79,05 Vol.-% N₂) kalibriert. Bedingt durch die geringfügig unterschiedlichen Wärmeleitfähigkeiten der Hintergrundgase Stickstoff (Kalibrierung) und Luft (Experiment) kommt es zu einem Offset von bis zu 0,3 Vol.-% bei der Wasserstoffmessung. Dieser Offset wird mittels einer Kalibrierkurve erfasst und analytisch korrigiert.

Die Unsicherheiten der Gaszusammensetzung am Eintritt sowie der Gasanalytik wurden von Drinovac [DRI05] genauer spezifiziert und sind in Tabelle 4.3 gegeben.

Messgröße	Messmethode	Unsicherheit
Strömungsgeschwindigkeit	Massendurchflussregler (Normvolumenströme)	$\pm 3\%$
Eintrittstemperatur	Ni-CrNi-Thermoelement	+ 10 K (Wärmestrahlung) entsprechend + 3% auf Geschwindigkeit
Gaseintrittszusammensetzung	Massendurchflussregler:	
	- H ₂	$\pm 2,68 \text{ mol/h}$
	- H ₂ O	$\pm 6,7 \times 10^{-3} \text{ mol/h}$
	- N ₂	$\pm 19,02 \text{ mol/h}$
Gaszusammensetzung	- O ₂	$\pm 5,05 \text{ mol/h}$
	Wärmeleitfähigkeitssensor (H ₂)	$\pm 0,18 \text{ Vol.-% H}_2$
	Paramagnetismus (O ₂)	$\pm 0,66 \text{ Vol.-% O}_2$
Proben Temperaturen	Ni-CrNi-Thermoelemente	$\pm 0,4 \%$

Tab. 4.3: REKO-3: Konservative Abschätzung der Messunsicherheiten nach Herstellerangaben [DRI05]

4.2.2 REKO-3-Datenbank für plattenförmige Katalysatorelemente

Die Datenbank für plattenförmige Katalysatorelemente ist aufgrund ihres hohen Detaillierungsgrades, der gut definierten Randbedingungen und der einfachen Geometrie sehr gut für die Validierung der grundlegenden Reaktionskinetik und des Wärmetransports geeignet. Abbildung 4.6 zeigt schematisch die Anordnung der Proben im Strömungskanal sowie experimentelle Randbedingungen und Messstellen.

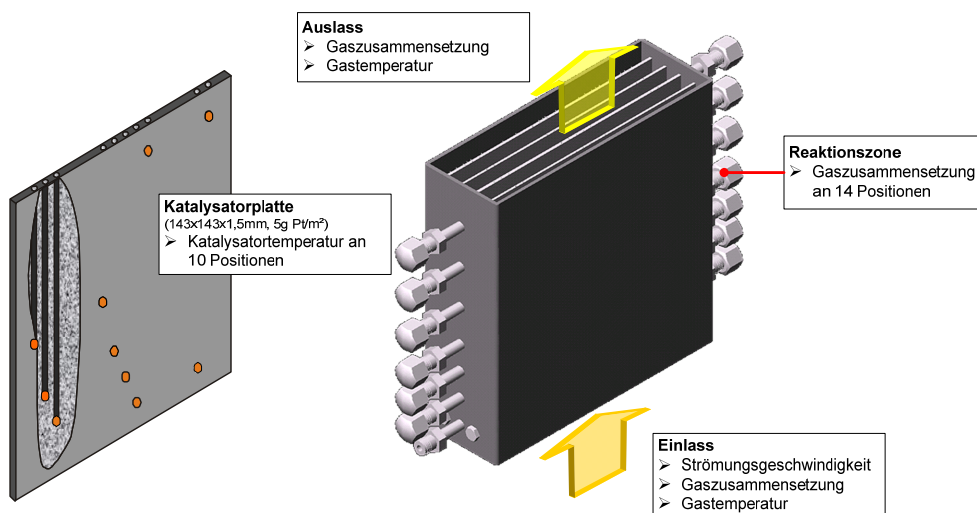


Abb. 4.6: REKO-3: Messstellen und Randbedingungen

Zur Messung der Katalysatortemperaturen befinden sich in zwei Katalysatorplatten stirnseitig zehn mittels Funkenerosion eingebrachte 0,6 mm Bohrungen mit bis zu 130 mm Tiefe, in denen Ni-CrNi-Thermoelemente positioniert werden. Dies hat zum einen den Vorteil, dass die Strömung und Oberflächenreaktion im Gegensatz zu aufgepunkteten Thermoelementen nicht beeinträchtigt werden. Zum anderen erfolgt die Messung im Gegensatz zur optischen Temperaturmessung durch direkten Kontakt mit der Probe, so dass diese Messmethode eine sehr zuverlässige und reproduzierbare Ermittlung der Katalysatortemperaturen ermöglicht. Zudem ist kein optischer Zugang nötig, und die Katalysatortemperatur kann simultan an verschiedenen Positionen gemessen werden, so dass fehlerhafte „Ausreißer“ leicht als solche identifiziert werden können.

Die Konzentrationsmessung erfolgt durch Gasentnahme in verschiedenen Höhen mittig im Strömungskanal zwischen zwei Katalysatorplatten. Diese Messung ist neben den Messunsicherheiten des Sensors und der Signalverarbeitung (vgl. Tab. 4.3) zusätzlich mit geometrischen Unsicherheiten verbunden. Zum einen ist die Position der Gasentnahmesonde im Kanal durch mögliche Winkelfehler bei der Sondenföhrung und eine mögliche Krümmung der Sonde selbst nicht präzise mittig zu ermitteln, zum anderen ist nicht definierbar, welches Gasvolumen die Sonde absaugt, wie also über die Kanalbreite gemittelt wird. Basierend auf diesen Erfahrungen von Drinovac [DRI05] wurde von Schwarz [SCW09] der Aufbau der Gasanalytik derart verbessert, dass zum einen Winkelfehler schon bei der Fertigung des Probenmoduls minimiert, und zum anderen Messgas mit möglichst geringem Volumenstrom abgezogen wird. Aus den Nachrechnungen der Versuche (vgl. Kap. 5.2.2) wird ersichtlich, dass die von Schwarz ermittelten Konzentrationsprofile die Werte auf der Symmetrieebene zwischen zwei Platten gut wiedergeben, wohingegen die von Drinovac gemessenen Konzentrationsprofile eher einen Mittelwert über die Kanalbreite darstellen. Für den Vergleich mit berechneten Daten wird daher bei Messwerten von Drinovac ein Mittelwert über die Kanalbreite (gepunktete Linie), bei Schwarz der Wert auf der Symmetrieebene (durchgezogene Linie), verwendet.

Die Daten liegen typischerweise als Temperatur- bzw. Konzentrationsprofile über der Katalysatorhöhe für definierte Eintrittszustände (Gaszusammensetzung, -temperatur und -geschwindigkeit) vor und wurden von Drinovac und Schwarz für die in Tabelle 4.4 angegebenen Parameter ermittelt.

Testreihe	v [m/s]	T_{in} [°C]	x_{H_2} [Vol.-%]	x_{O_2} [Vol.-%]	x_{H_2O} [Vol.-%]
H ₂ in trockener Luft	0,25 / 0,50 / 0,75 / 1,00	25/70/110	1-6	20,95	~0
Sauerstoffverarmung	0,25 / 0,50 / 0,75 / 1,00	25	2 / 4 / 6	1-8	~0
Dampfeinfluss	0,25	110	1-6	20,95	20 / 60
Teilbeschichtung	0,25 / 0,50 0,75 / 1,00	25	1-4	20,95	~0

Tab. 4.4: REKO-3-Datenbank für plattenförmige Katalysatorelemente [DRI05, SCW09, GRS08]

4.2.3 REKO-3-Versuche am zylindrischen Katalysatorelement

Für die numerische Untersuchung einer möglichen Einbindung von mit Katalysator beschichteten Rohren in einen Gebäudekondensator ist die Übertragbarkeit des Reaktionskinetikmodells auf zylindrische Geometrien nachzuweisen, die Kühlbarkeit des Katalysatorelements zu zeigen und ein möglicher Einfluss der Kühlung des Katalysatorelements auf die Reaktionskinetik näher zu untersuchen. Daher wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit Versuche an einem rohrförmigen Katalysatorelement im Prüfstand REKO-3 durchgeführt. Hierzu wurde das Probenmodul wie in Abb. 4.7 dargestellt konfiguriert.

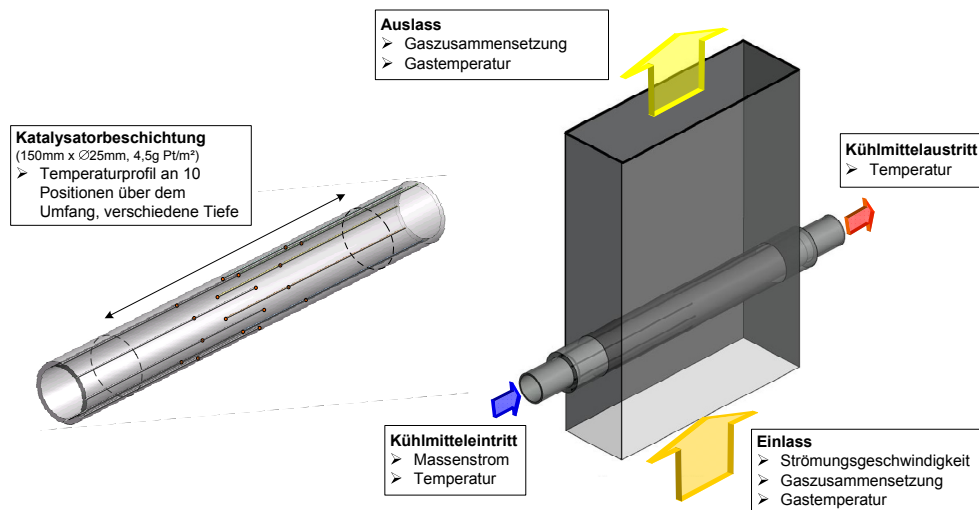


Abb. 4.7: REKO-3: Messstellen und Randbedingungen an einem zylindrischen (gekühlten) Katalysatorelement

Das rohrförmige Katalysatorelement hat einem Außendurchmesser von 25 mm, eine Gesamtlänge von 200 mm, eine Wandstärke von 3 mm und ist waagrecht im Strömungskanal angeordnet. Als Katalysator wurde von der Firma Chemical Consulting Dornseiffer (CCD) in Aachen ein Washcoat aus Lanthan-stabilisiertem Aluminiumoxid (Al_2O_3) aufgetragen und mit Platin bedeckt. Die Bedeckung von $4,5 \text{ mg/cm}^2$ beinhaltet einen spezifischen Platin-Gehalt von $35 \mu\text{g/cm}^2$ bei einer Schichtdicke von ungefähr 200 μm und entspricht in etwa den in kommerziell erhältlichen Rekombinatoren verwendeten Katalysatorbeschichtungen.

Zur Messung der Katalysatortemperatur wurden analog zu den früheren Messreihen funkenerosiv gefertigte 0,6 mm Bohrungen mit 100 mm Tiefe stirnseitig in den Probenkörper eingebracht. Jeweils fünf Bohrungen sind wechselseitig und im Abstand von 45° angeordnet und ermöglichen die Positionierung von 0,5 mm starken Ni-CrNi-Thermoelementen in variabler Tiefe im Probenkörper.

In das beschichtete rohrförmige Katalysatorelement sind beidseitig 100 mm lange Rohre mit einer Wandstärke von 1 mm eingelötet, um den Anschluss an die Wasserleitung zu ermöglichen und den Probenkörper zur Kühlung mit Wasser zu durchströmen. Der Kühlmittelmassenstrom wird mittels eines Durchflussmessers (Rotameter) und einer Drossel voreingestellt und durch Auswiegen und zeitliche Mittelung bestimmt.

Die mit dem Kühlmittel abgeführte Wärmeleistung wird aus der Aufheizspanne zwischen Zu- und Ablauf des Probenkörpers ermittelt. Zur Bestimmung der integralen Reaktionsraten werden die Gaskonzentrationen im Einlaufbereich vor dem Probenkörper sowie am Austritt des Prüfstands gemessen. Nachrechnungen der Versuchsreihen mittels eines CFD-Modells (vgl. Kap 5.2) zeigen eine homogene Konzentrationsverteilung am Austritt des Prüfstands, so dass die integralen Reaktionsraten unter Berücksichtigung der Messgenauigkeit hinreichend genau bestimmt werden können. Die Berechnung der integralen Reaktionsrate erfolgt durch Bilanzierung der ein- und austretenden Stoffströme analog zum Vorgehen von Drinovac [DRI05].

Zur Überprüfung der Übertragbarkeit des Reaktionskinetikmodells wurde zunächst eine Messreihe ohne Kühlung des Probenkörpers durchgeführt und zweidimensionale Temperaturprofile in der Mitte des Probenkörpers sowie die zugehörigen integralen Werte, wie z. B. Reaktionsraten oder Austrittswerte, ermittelt. In einer aufbauenden Versuchsreihe wurde der Probenkörper mit Wasser ($T_{\text{in}} \sim 25^\circ\text{C}$) durchströmt, um den Wärmetransport und den Einfluss der Kühlung auf die Reaktionskinetik genauer zu untersuchen.

Störfalltypische Randbedingungen im SB, d. h. Drücke von bis zu 4,5 bar (DWR) bzw. 6,5 bar (SWR) und Gastemperaturen bis 150°C [DRE99, ROS09], können aufgrund technischer Begrenzungen am Versuchsstand REKO-3 nicht realisiert werden. Daher wurde die Gaseintrittstemperatur auf den technisch realisierbaren Wert von 70°C bei 1 bar Atmosphärendruck festgelegt. Dieses Temperaturniveau ist bei vorhandener Heizleistung für den gesamten Parameterbereich (Strömungsgeschwindigkeit und Wasserstoffkonzentration) realisierbar und erlaubt eine ausreichende Aufheizung des Kühlmediums durch die katalytische Oberflächenreaktion. Gasseitig orientiert sich das Parameterfeld an den bereits in Tab. 4.4 vorgestellten Messreihen. Drinovac [DRI05] und Schwarz [SCW09] konnten zeigen, dass sich alle in Tab. 4.4 zusammengefassten Ergebnisse sehr gut in die Vorstellung einer stofftransportkontrollierten Reaktionskinetik einfügen. Für den Nachweis der Übertragbarkeit dieser Modellvorstellung auf die zylindrische Geometrie genügt daher die Untersuchung einiger ausgewählter Parameter (v , x_{H_2}).

Kühlmittelseitig ist im Störfall eine zweiphasige Strömung mit geringen Dampfgehalten von bis zu 5 % zu betrachten [FET98]. Bei gegebenen Dimensionen des Probenkörpers lässt sich kühlmittelseitig kein stabiler Siedezustand einstellen, es wurde daher nur eine einphasige Strömung betrachtet. Durch die Festlegung der Grenzen der Kühlleistung wird der Bereich von maximaler Kühlung bis hin zur minimalen Kühlleistung nahe dem Siedepunkt bei niedrigem Kühlmitteldurchfluss abgedeckt.

Im Rahmen der Versuchsreihe wurden 2D-Katalysatortemperaturprofile bei ein Drittel bzw. zwei Drittel der Länge des Probenkörpers, Aufheizspannen von Gas und Kühlmittel sowie die integrale Reaktionsraten ermittelt. Einen Überblick über die gewonnene Datenbasis gibt Tabelle 4.5.

Testreihe	v [m/s]	T_{in} [°C]	x_{H_2} [Vol.-%]	x_{O_2} [Vol.-%]	x_{H_2O} [Vol.-%]	m_w [kg/h]
ungekühlt	0,2 / 0,5 / 0,8	25	1-6	20,95	~0	0
gekühlt	0,2 / 0,5 / 0,8	70	1-6	20,95	~0	1-10

Tab. 4.5: REKO-3-Datenbank für Rekombination an zylindrischen Katalysatorelementen

Zusätzlich wurde der Einfluss der Kühlung auf die Reaktionskinetik untersucht. Anhand einer ersten Auswertung der integralen Reaktionsraten konnte gezeigt werden, dass oberhalb einer mittleren Katalysatortemperatur von ca. 100°C kein signifikanter Einfluss der Kühlleistung auf die Reaktionsrate besteht. Hierzu wurden auf Basis der experimentellen Daten Arrhenius- bzw. Sherwood-Ansätze zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der integralen Reaktionsrate abgeleitet. Diese Modellvorstellung (durchgezogene Linie) ist in Abbildung 4.8 ist den experi-

mentellen Daten (Punkte) beispielhaft für die Versuchsreihe mit 0,5 m/s Strömungsgeschwindigkeit gegenübergestellt.

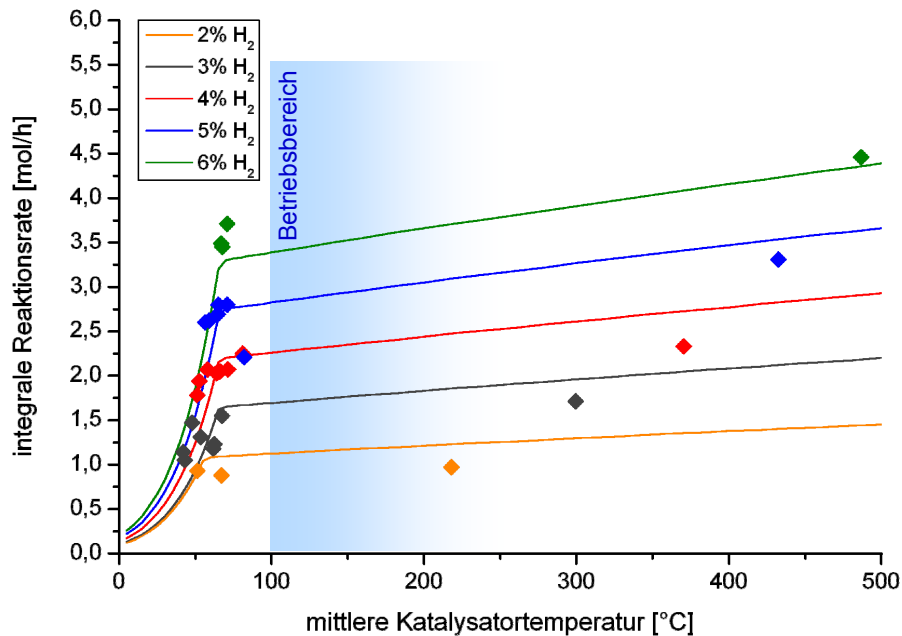


Abb. 4.8: Abhängigkeit der Reaktionskinetik von der Katalysatortemperatur

Unterhalb einer Katalysatortemperatur von ca. 70°C ist eine exponentielle Temperaturabhängigkeit aufgrund der reaktionskontrollierten Kinetik zu beobachten. Der - für die Integration in ein Kondensatorbündel - vorgesehene Betriebsbereich (<100°C) liegt jedoch im stofftransportkontrollierten Bereich der Reaktionskinetik. Die Übertragbarkeit des Modells für dieses Temperaturniveau ist daher gegeben.

Im Rahmen von Nachrechnungen der Versuche mit Hilfe eines detaillierten CFD-Modells (vgl. Anhang 2) konnte dies prinzipiell bestätigt werden. Auch bei dieser detaillierten Betrachtung zeigt sich eine signifikante Abweichung der experimentellen Daten zur Modellvorstellung einer stofftransportkontrollierten Reaktionskinetik ausschließlich bei niedrigen Katalysatortemperaturniveaus unterhalb von ca. 80°C.

5 Modellentwicklung und -validierung

5.1 Simulation turbulenter Strömungen

Die meisten technischen Strömungen sind turbulent, d. h. sie sind lokal instationär und ihre physikalischen Eigenschaften sind hochfrequenten dreidimensionalen Schwankungen unterworfen. Oberhalb eines bestimmten Wertes der charakteristischen Kennzahl (z. B. Reynolds-Zahl) treten quer zur schichtenartigen Bewegungsform der Strömung zusätzliche Eigenbewegungen größerer Fluidvolumina, sog. Turbulenzballen, auf. Diese turbulente Mischbewegung ist maßgebend für den Druckverlust, Reibungswiderstand sowie Wärme- und Stofftransport und wirkt sich wie eine um mehrere Zehnerpotenzen erhöhte Zähigkeit des Fluids aus.

Parallel zur steigenden Rechnerleistung hat sich eine neue Herangehensweise an thermohydraulische Problemstellungen entwickelt. An die Stelle einer speziellen Lösung z. B. mit Hilfe der Ähnlichkeitsmechanik tritt nun eine generalisierte Beschreibung, die nahezu uneingeschränkt auf thermohydraulischen Fragestellungen angewandt werden kann. In der numerischen Strömungsmechanik (CFD: Computational Fluid Dynamics) werden die in Kapitel 3.1 eingeführten Navier-Stokes'schen Gleichungen, d. h. die Bilanzgleichungen für Gesamtmasse, Impuls und Enthalpie, die ein turbulentes Strömungsfeld vollständig beschreiben, auf ein Rechengitter diskretisiert und numerisch gelöst. Die Lösung verschiedener Probleme unterscheidet sich bei der CFD-Modellierung nur noch durch die vorgegebenen Randbedingungen und die notwendigen Näherungen.

Zur Beschreibung der Turbulenz existieren mehrere Ansätze sowohl unterschiedlichen Abstraktionsgrades als auch numerischen Aufwands. Im Folgenden sollen die verschiedenen Verfahren kurz vorgestellt werden. Nach Ableitung des Gleichungssystems wird kurz auf die zur Lösung erforderlichen Randbedingungen eingegangen.

Die modellfreie Lösung des instationären Gleichungssystems ermöglicht die Methode der direkten numerischen Simulation (DNS), die ohne Modellterme für die feinskaligen Anteile der turbulenten Strömung auskommt. Allerdings ist für turbulente Strömungen der Rechenaufwand sehr hoch, da aufgrund der Nichtlinearität noch kleinste Störungen die Lösung beeinflussen, und somit auch die kleinsten turbulenten Fluktuationen noch aufgelöst werden müssen. Das Verhältnis der größten zu den kleinsten auftretenden turbulenten Skalen hängt im Wesentlichen von der Reynolds-Zahl ab. Die erforderliche Anzahl der Gitterpunkte ist deshalb proportional zu $Re^{9/4}$, der Rechenaufwand zu $Re^{11/4}$ [FER08].

Bei der Grobstruktursimulation (LES: Large Eddy Simulation) werden große Turbulenzbewegungen soweit wie möglich räumlich und zeitlich aufgelöst, klein-

skalige turbulente Bewegungen werden mit einem Feinstrukturmodell abgebildet. Diese Methode bietet zwar verglichen mit DNS vertretbarere Rechenzeiten, jedoch sind zum einen mindestens 10^5 Zeitschritte erforderlich, um verlässliche statistische Werte zu erhalten [FRÖ06]. LES- und DNS-Berechnungen können aufgrund des instationären und dreidimensionalen Charakters der Turbulenz nur dreidimensional und instationär durchgeführt werden, auch wenn die Strömung tatsächlich stationär und zweidimensional ist.

Eine Methode, den numerischen Aufwand um den Faktor 100-1000 gegenüber LES zu senken, bietet die von Reynolds 1894 vorgeschlagene statistische Betrachtungsweise [LEC09]. Hierbei wird die zeitliche Mittelung vor der Berechnung durchgeführt. Die sog. Reynolds-Gleichungen (RANS: Reynolds-Averaged-Navier-Stokes equations) werden aus den Navier-Stokes-Gleichungen gewonnen, indem die Momentanwerte der einzelnen Strömungsgrößen Φ durch deren Mittelwerte und Schwankungsgrößen substituiert werden:

$$\Phi = \bar{\Phi} + \Phi' . \quad (5.1)$$

Diese werden bei kompressiblen Strömungen zusätzlich über die Dichte ρ gemittelt (Favre-Mittelung, [WIL85]):

$$\Phi = \tilde{\Phi} + \Phi'' \quad \text{mit} \quad \tilde{\Phi} = \frac{\overline{\rho\Phi}}{\bar{\rho}} . \quad (5.2)$$

Die entstandenen Gleichungen werden nach den Mittelungsvorschriften (Tab. 5.1) zeitlich gemittelt, wobei die zeitliche Mittelung hierbei als Ensemble-Mittel, d. h. als Mittelung über einen begrenzten Zeitraum zu verstehen ist, so dass nur die Kurzzeitvorgänge der Turbulenz geglättet werden, d. h. $\overline{\Phi'} = 0$, der instationäre Charakter der Grundströmung jedoch erhalten bleibt (vgl. Abb. 5.1).

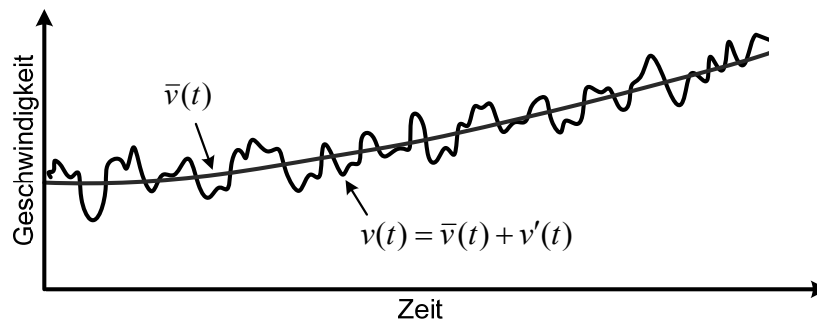


Abb. 5.1: Aufspaltung der Momentanwerte der Geschwindigkeit in Mittelwert und Schwankungsgröße [BIR02]

Reynolds Mittelung			Favre Mittelung		
$\overline{\Phi'} = 0$	$\overline{\Phi} = \Phi$	$\overline{\Phi\Phi'} = 0$	$\overline{\Phi''} = 0$	$\tilde{\Phi} = \Phi$	$\overline{\tilde{\Phi}\Phi''} = 0$
$c\overline{\Phi} = c\overline{\Phi}$, $c = \text{konst}$			$c\overline{\Phi} = c\tilde{\Phi}$, $c = \text{konst.}$		
$\frac{\partial \overline{\Phi}}{\partial x} = \frac{\partial \overline{\Phi}}{\partial x}$	$\frac{\partial \overline{\Phi}}{\partial t} = \frac{\partial \overline{\Phi}}{\partial t}$		$\frac{\partial \overline{\Phi}}{\partial x} = \frac{\partial \tilde{\Phi}}{\partial x}$	$\frac{\partial \overline{\Phi}}{\partial t} = \frac{\partial \tilde{\Phi}}{\partial t}$	
$\overline{\Phi X} = \overline{\Phi} \overline{X} + \overline{\Phi' X'}$			$\overline{\Phi X} = \tilde{\Phi} \tilde{X} + \overline{\Phi'' X''}$		

Tab. 5.1: Reynolds- und Favre-Mittelungsvorschriften [WIL85]

Das so entstandene Gleichungssystem (Gln. 5.3 – 5.6) ähnelt den bereits einleitend in Kapitel 3.1 vorgestellten Navier-Stokes-Gleichungen mit der Ausnahme, dass nach der Mittelung zusätzliche Terme auftreten, die die fluktuierenden Größen enthalten:

$$\frac{\partial \overline{\rho}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\overline{\rho \tilde{u}_i}) = 0, \quad (5.3)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \overline{\rho \tilde{u}_j}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\overline{\rho \tilde{u}_i \tilde{u}_j}) + \frac{\partial \overline{\rho u_i'' u_j''}}{\partial x_j} = - \frac{\partial \overline{p}}{\partial x_j} + \frac{\partial \overline{\tau_{ij}}}{\partial x_i} + \sum_k f_k, \\ \overline{\tau_{ij}} = \mu \left[\frac{\partial \tilde{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \tilde{u}_j}{\partial x_i} \right] - \frac{2}{3} \mu \frac{\partial \tilde{u}_k}{\partial x_k} \delta_{ij}, \end{aligned} \quad (5.4)$$

$$\frac{\partial \overline{\rho \tilde{e}_i}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\overline{\rho \tilde{u}_i \tilde{e}_i}) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\lambda \frac{\partial \tilde{T}}{\partial x_i} - \overline{\rho u_i'' e_i''} \right) + \overline{\dot{w}_R}, \quad (5.5)$$

$$\frac{\partial \overline{\rho \tilde{Y}_n}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\overline{\rho \tilde{u}_i \tilde{Y}_n}) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\overline{\rho D_n} \frac{\partial \tilde{Y}_n}{\partial x_i} - \overline{\rho u_i'' Y_n''} \right) + \overline{\dot{w}_n}. \quad (5.6)$$

Zur Lösung des Gleichungssystems ist für diese zusätzlichen Terme, die die turbulenten Spannungen $\overline{\rho u_i'' u_j''}$ und den turbulenten Transport der Spezies $\overline{\rho u_i'' Y_n''}$ sowie der Energie $\overline{\rho u_i'' e_i''}$ beschreiben, ein Schließungsmodell, das sogenannte Turbulenzmodell, erforderlich.

Zur Modellierung des turbulenten Spannungstensors wird die Boussinesq-Hypothese (1877) angewandt. Sie stellt einen Zusammenhang zwischen den turbulenten Spannungen und den mittleren Geschwindigkeitsgradienten her:

$$\overline{\rho u_i'' u_j''} = -\mu_t \left(\frac{\partial \tilde{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \tilde{u}_j}{\partial x_i} \right) + \frac{2}{3} \mu \frac{\partial \tilde{u}_k}{\partial x_k} \delta_{ij}. \quad (5.7)$$

Die Boussinesq-Hypothese setzt isotrope Turbulenz voraus und reduziert die Turbulenzmodellierung auf die Ermittlung der turbulenten Viskosität μ_t . Zur

Berechnung der Wirbelviskosität existiert eine Vielzahl von Modellen [FER08]. Als Industriestandard haben sich sogenannte Zweigleichungsmodelle etabliert, die mittels zweier Transportgleichungen für die turbulente kinetische Energie k sowie die Wirbelfrequenz ω bzw. Dissipationsrate ε die Entstehung, den Transport und die Dissipation von Turbulenz abbilden. Die bekanntesten sind das $k - \omega$ -Modell (Wilcox, 1993) und das $k - \varepsilon$ -Modell (Launder & Spalding, 1974).

Die prinzipielle Formulierung eines solchen Wirbelviskositäts-Turbulenzmodells sei beispielhaft am $k - \varepsilon$ -Modell erläutert:

$$\frac{\partial(\rho k)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u_j k)}{\partial x_j} = P_k - \rho \varepsilon + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right), \quad (5.8)$$

$$\frac{\partial(\rho \varepsilon)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u_j \varepsilon)}{\partial x_j} = C_{\varepsilon 1} \frac{\varepsilon}{k} P_k - C_{\varepsilon 2} \frac{\varepsilon^2}{k} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j} \right). \quad (5.9)$$

Hierbei sind der erste und zweite Term auf der rechten Seite der k - und ε -Gleichung ein Produktions- (P_k) und Dissipationsterm (ε). Die restlichen Terme beschreiben (v.l.n.r.) Akkumulation sowie konvektiven und diffusiven Transport. Die Produktion von turbulenter kinetischer Energie wird aus den mittleren Geschwindigkeitsgradienten berechnet:

$$P_k = \mu_t \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{2}{3} \rho k \delta_{ij} \frac{\partial u_i}{\partial x_j}. \quad (5.10)$$

Die Wirbelviskosität berechnet sich letztendlich über:

$$\mu_t = C_\mu \rho \frac{k^2}{\varepsilon}. \quad (5.11)$$

Bei den Gln. 5.8 – 5.11 sind $C_{\varepsilon 1}$, $C_{\varepsilon 2}$, σ_k , σ_ε und C_μ Modellkonstanten.

Das $k - \varepsilon$ -Modell liefert in der freien Strömung gute Ergebnisse, ist jedoch auf die Verwendung von Wandfunktionen oder komplexen Dämpfungstermen in Wandnähe angewiesen, da die ε -Gleichung dort ansonsten gegen unendlich strebt.

In der vorliegenden Arbeit wird das Shear-Stress-Transport-(SST-) Modell (Menter, 1994) verwendet. Es kombiniert die guten Eigenschaften des $k - \omega$ -Modells in Wandnähe mit den guten Eigenschaften des $k - \varepsilon$ -Modells im restlichen Strömungsfeld. Hierdurch liefert es im gesamten Strömungsfeld, auch bei Phänomenen wie der druckinduzierten Strömungsablösung oder dem konvektiven Wärmeübergang, gute Ergebnisse [LEC09, MEN01]. Eine ausführliche Herleitung, Beschreibung aller zusätzlichen Begrenzungs- und Blendfunktionen sowie Validierung des SST-Modells findet sich bei Menter et al [MEN01].

Der turbulente Transport der Spezies sowie der Energie wird mittels Gradienten-Diffusion-Hypothese modelliert [WIL85]. Sie besagt, dass die turbulenten Ströme sich analog zum diffusiven Transport (Diffusion, Wärmeleitung) verhalten:

$$\overline{\rho u_i'' Y_n''} = - \frac{\mu_t}{Sc_t} \frac{\partial \tilde{Y}_n}{\partial x_i}, \quad (5.12)$$

$$\overline{\rho u_i'' e_t''} = - \frac{\mu_t}{Pr_t} \frac{\partial \tilde{T}}{\partial x_i}. \quad (5.13)$$

Hierbei sind Sc_t bzw. Pr_t die turbulente Schmidt- und Prandtl-Zahl. Anhand von verschiedenen Experimenten wurde nachgewiesen, dass sie nahezu konstante Werte von $Sc_t \sim 0.9$ und $Pr_t \sim 2.0$ annehmen.

Zur Lösung der Navier-Stokes'schen Gleichungen für eine laminare Strömung sind die in Tabelle 5.2 angegebenen Randbedingungen erforderlich. Die Randbedingung kann unter Vorgabe eines direkten Randwertes (Dirichlet-Randbedingung) oder eines Flusses normal zum Rand (Neumann-Randbedingung) formuliert werden.

Rand	Dirichlet Randbedingung	Neumann Randbedingung
Zuströmrand	Geschwindigkeit / Druck / Massenstrom	
	Temperatur	
	Zusammensetzung	
Abströmrand	Gegendruck, Massenstrom	
Festkörperwand	Geschwindigkeit /	Symmetrie ($\partial\Phi/\partial\Phi = 0$)
	Schubspannung	Wärmestrom ($\lambda \partial T/\partial x$)
	Temperatur	Schubspannung ($\mu \partial u/\partial x$)

Tab. 5.2: Randbedingungen zur Lösung der laminaren Navier-Stokes'schen Gleichungen

Bei turbulenten Strömungen muss zudem der Turbulenzgrad am Zuströmrand definiert werden. Hier ist es üblich, falls keine experimentellen Werte vorliegen, die Turbulenzintensität (T_u [%]) und eine charakteristische Längenskala L (z. B. Rohrdurchmesser) für die Turbulenz anzugeben. Die Einströmrandwerte für k und ε lassen sich gemäß den Gleichungen 5.14 und 5.15 errechnen:

$$k = \frac{2}{3} (u T_u)^2, \quad (5.14)$$

$$\varepsilon = C_\mu^{3/4} \frac{k^2}{0.07L}. \quad (5.15)$$

Üblicherweise formuliert man die Randbedingung am Festkörperperrand in Form der Wandhaftbedingung, d. h. in unmittelbarer Wandnähe, der zähen (viskosen) Unterschicht, gehen die Reynoldsspannungen aufgrund der Wandhaftbedingung gegen null. Der gesamte Impulstransport wird dort von viskosen Spannungen dominiert. An die zähe Unterschicht schließt sich ein Übergangsbereich an, in dem die Geschwindigkeitsfluktuationen turbulente Schubspannungen von der Größenordnung der viskosen Spannungen erzeugen. Mit zunehmendem Abstand von der Wand überwiegen schließlich die turbulenten Schubspannungen. Abbildung 5.2 zeigt das charakteristische Geschwindigkeitsprofil einer turbulenten Strömung an einer glatten Wand. Zur Skalierung sind der dimensionslose Wandabstand y^+ und die dimensionslose Geschwindigkeit u^+ eingeführt:

$$y^+ = y \frac{u_\tau}{\nu} \quad \text{mit} \quad u_\tau = \sqrt{\frac{\tau_w}{\rho}}, \quad (5.16)$$

$$u^+ = \frac{\bar{u}}{u_\tau}. \quad (5.17)$$

Hierbei ist u_τ die Schergeschwindigkeit an der Wand.

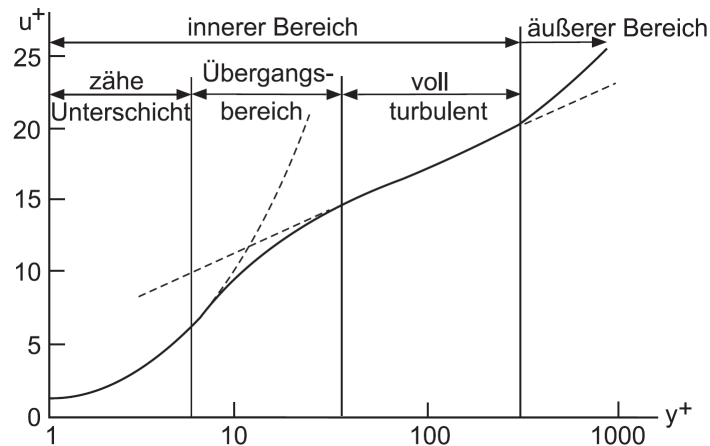


Abb. 5.2: Dimensionsloses Geschwindigkeitsprofil bei turbulenter Strömung über glatten Oberflächen [RUN02]

Im wandnahen Bereich, dem sogenannten low-Reynolds-Bereich, nimmt die Geschwindigkeit linear mit dem Wandabstand zu:

$$u^+ = y^+. \quad (5.18)$$

Für den voll-turbulenten Bereich der Grenzschicht, dem sogenannten high-Reynolds-Bereich, lässt sich das sogenannte logarithmische Wandgesetz formulieren:

$$u^+ = \frac{1}{\kappa} \ln(Ey^+). \quad (5.19)$$

Hierbei sind κ die Karman Konstante ($\kappa = 0.41$) und E eine Modellkonstante (bei glatten Wänden $E = 8.432$).

Bei Strömungen, die durch Wandreibung τ_w bestimmt sind, gibt es zwei Möglichkeiten, den wandnahen Bereich zu beschreiben.

Eine effektive Möglichkeit ist die Überbrückung der viskosen Unterschicht mittels Verwendung der oben beschriebenen Wandfunktionen (vgl. Abb. 5.3). Hierbei wird τ_w als Funktion der tangentialen Geschwindigkeit in der wandnahen Zelle beschrieben und als Randbedingung für die Impulsgleichungen zur Verfügung gestellt. Die Randwerte der restlichen Strömungsvariablen errechnen sich ebenfalls aus vorgegebenen Profilen. Der wandnahe Knoten liegt hierbei bereits im turbulenten Bereich ($y^+ \approx 20..100$).

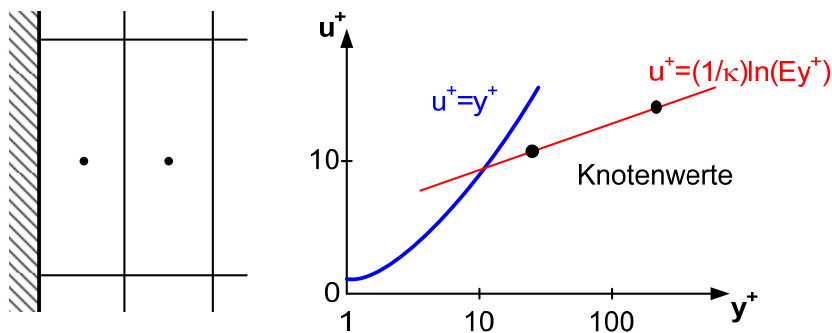


Abb. 5.3: Anwendung von Wandfunktionen

Diese high-Reynolds-Randbedingung erlaubt eine effiziente Auflösung der Grenzschicht mit ungefähr 10 Knoten, wird aber ungenau bei beheizten Wänden, Strömungsablösung, Grenzschichtströmungen mit wandnormaler Geschwindigkeit und dreidimensionalen Grenzschichten. Eine genauere Abbildung bietet die Verwendung sogenannter low-Reynolds Modelle, die bis an die Wand integriert werden können.

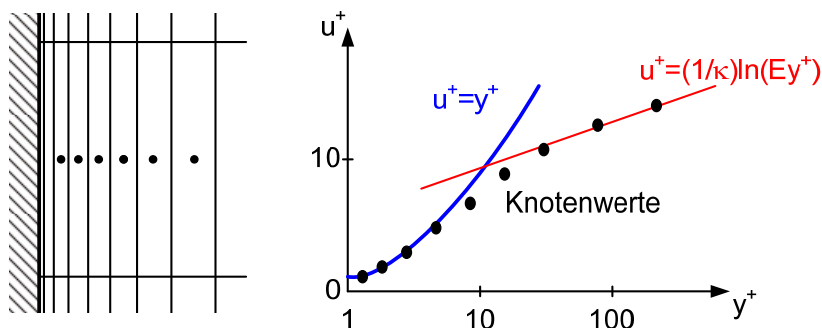


Abb. 5.4: Anwendung von low-Reynolds-Modellen

Hierbei ist keine Annahme über den wandnahen Verlauf der Strömungsvariablen erforderlich, jedoch muss die Grenzschicht mit dem Rechengitter aufgelöst werden (vgl. Abb. 5.4). Der wandnahe Knoten liegt hierbei in der viskosen Unterschicht ($y^+ \approx 1$).

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird das kommerzielle Programmpaket CFX11 der Firma ANSYS [ANS07] verwendet. Die implementierten numerischen Verfahren und Lösungsalgorithmen sind Stand der Technik. An dieser Stelle wird daher statt eigener Beschreibung auf die Softwaredokumentation [ANS07] sowie die Bücher von Ferziger und Peric [FER08] sowie Versteeg und Malalasekera [VER07] verwiesen.

5.2 Modellierung der heterogenen katalytischen Reaktion

5.2.1 Implementierung des Reaktionsmodells

Für die Modellierung von Washcoat-Katalysatoren wurden von Behrendt [BEH99] detaillierte Ansätze vorgestellt, die sowohl die Transportprozesse im Washcoat sowie Gasphasen- und Oberflächenreaktionen abbilden. Ebenfalls sind kommerzielle Programmpakete, z. B. DETHEM [DEU07], verfügbar, um Katalysatoren auszulegen.

Für die in dieser Arbeit behandelte Thematik ist es erforderlich, Umsatz und Wärme-freisetzung der Reaktion abzubilden, nicht jedoch Detailspekte wie z. B. Startverhalten, Katalysatorvergiftung oder auch katalytische Zündung. Daher wurde für die Modellierung der katalytischen Oberflächenreaktion das Konzept des geschwindigkeitsbestimmenden Schritts (Rate Determining Step) verwendet.

Die integrale Reaktionsrate wird durch den langsamsten Teilschritt (vgl. Kap. 3.2) bestimmt. Der Einfluss der Konzentration der Reaktanden wirkt sich in allen Teilschritten gleich aus, die Temperatur beim Transport nur marginal (über die Stoffeigenschaften und Diffusionskoeffizienten), bei der Oberflächenreaktionskinetik jedoch exponentiell. Diese Abhängigkeit verdeutlicht Abbildung 5.5.

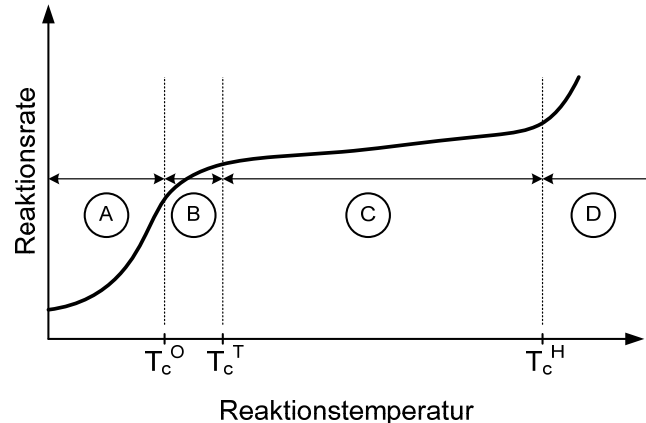


Abb. 5.5: Abhängigkeit der Reaktionsrate von der Temperatur [BAE04]

Im Bereich A, unterhalb einer charakteristischen Temperatur T_c^O , wird die Reaktionsgeschwindigkeit durch die Oberflächenreaktionskinetik bestimmt. Bei Erhöhung der Temperatur wird ein Übergangsgebiet (B) durchlaufen, in dem sich die inneren Transportprozesse auswirken. Bei weiterer Temperatursteigerung über T_c^T reduziert sich dieser Einfluss und der äußere Stofftransport bestimmt die Reaktionsrate. Eine weitere deutliche Temperaturerhöhung über T_c^H hinaus hat den Übergang zu einer katalytisch unterstützten Gasphasenreaktion (D) zur Folge.

Vorangegangene experimentelle Untersuchungen an Katalysatorelementen zur Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff von Reinecke [REI04], Drinovac [DRI05] und Schwarz [SCW09] zeigen, dass die Elementarschritte Porendiffusion und Reaktion im relevanten Temperaturbereich oberhalb 130°C für gängige Katalysatoren auf wesentlich kürzeren Zeitskalen ablaufen als der Transport der Reaktanden aus der Gasphase an die Oberfläche. Die Reaktionskinetik wird also ausschließlich durch den äußeren Stofftransport bestimmt.

Für die Modellierung der heterogenen Katalyse bedeutet dies im vorliegenden Fall, dass auf die geometrische Auflösung der porösen Washcoat-Beschichtung und die detaillierte Abbildung der Oberflächenreaktionskinetik verzichtet werden kann. Ebenso muss ausschließlich der Transport der Reaktanden H_2 und O_2 sowie des Produkts H_2O , nicht aber der der Zwischenprodukte OH , H , O , beschrieben werden. Diese Modellvereinfachung verdeutlicht Abbildung 5.6.

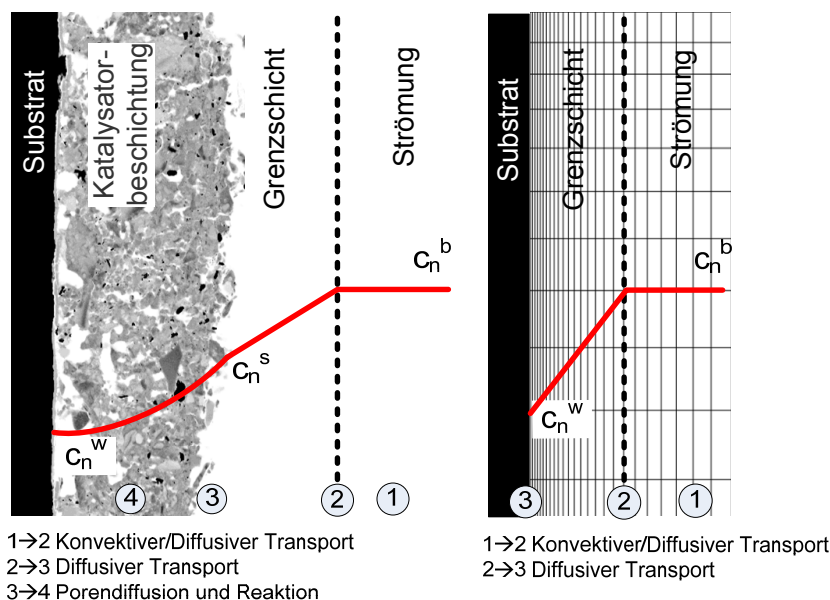


Abb. 5.6: Heterogene Katalyse: Theorie und Modellvereinfachung

Die Strömung wird durch ein System von kompressiblen RANS Gleichungen (Gln. 5.35.5) beschrieben und der Transport der Reaktanden H_2 und O_2 sowie des Produkts H_2O mittels Transportgleichungen (Gl. 5.6) abgebildet. Die Grenzschicht wird räumlich voll aufgelöst und mittels eines low-Reynolds-Ansatzes die Verwendung und Ungenauigkeit von Wandfunktionen bei der Modellierung der Transportprozesse in der laminaren, viskosen Unterschicht umgangen.

Hierdurch vereinfacht sich die Transportgleichung (Gl. 5.6) für die Reaktanden senkrecht zur Wand zu

$$0 = \bar{\rho} D_n \left. \frac{\partial \tilde{Y}_n}{\partial y} \right|_w + \bar{\dot{w}}_n \quad n = H_2, O_2, \quad (5.20)$$

da der turbulente Transport nahe der Wand zu null wird. Unter Vernachlässigung von Adsorptions- und Desorptionsprozessen tritt kein Netto-Massenstrom senkrecht zur Oberfläche auf, und der Konvektionsterm entfällt.

Mit dem zugrunde gelegten Modellierungsansatz einer diffusionskontrollierten Reaktion lässt sich die Reaktionsrate (bezogen auf Wasserstoff) somit durch die Transportrate der Reaktanden an die Oberfläche beschreiben:

$$\bar{\dot{w}}_R = \min \left\{ \begin{array}{l} \bar{j}_{H_2} = \bar{c} D_{H_2,m} \left. \frac{\partial \bar{X}_{H_2}}{\partial y} \right|_w \\ 2 \cdot \bar{j}_{O_2} = 2 \bar{c} D_{O_2,m} \left. \frac{\partial \bar{X}_{O_2}}{\partial y} \right|_w \end{array} \right. . \quad (5.21)$$

Hierbei ist \bar{c} die mittlere molare Konzentration des Gasgemischs. Die Oberflächenreaktion wird als Einschrittreaktion gemäß der Bruttoreaktionsgleichung



mit Hilfe von Senken und Quelltermen in den Spezies-Transportgleichungen sowie in der Energiegleichung abgebildet:

$$\dot{S}_{H_2} = -\bar{\dot{w}}_R \cdot M_{H_2}, \quad (5.23)$$

$$\dot{S}_{O_2} = -\frac{1}{2} \bar{\dot{w}}_R \cdot M_{O_2}, \quad (5.24)$$

$$\dot{S}_{H_2O} = +\bar{\dot{w}}_R \cdot M_{H_2O}, \quad (5.25)$$

$$\dot{S}_E = \bar{\dot{w}}_R \cdot \Delta h_R. \quad (5.26)$$

Dieser Transportansatz wird in CFX analog zu einem Regelkreis (vgl. Abb. 5.7) implementiert. Mithilfe von Wandsenken (Stellgrößen), die durch einen geeigneten Regler bestimmt werden, wird die Konzentration in den Randzellen (Regelgröße) auf die geforderte Wandkonzentration (Stellgröße) geregelt. Die Regelstrecke ist hierbei der CFX-Löser, die neue Lösung des Strömungs-, Temperatur- und Konzentrationsfeldes eines jeden Iterationsschritts ist als Störgröße zu verstehen. Im eingeregelter Zustand, d. h. bei konvergierter Lösung, entspricht der Senkenterm der Transportrate aus dem vorangegangenen Iterationsschritt. Dieser Zustand wird anhand des Verlaufs von Zielgrößen (z. B. Reaktionsrate, Reglerabweichung) sowie der globalen und lokalen Residuen über dem Iterationsfortschritt festgestellt (vgl. Kap. 5.4.1).

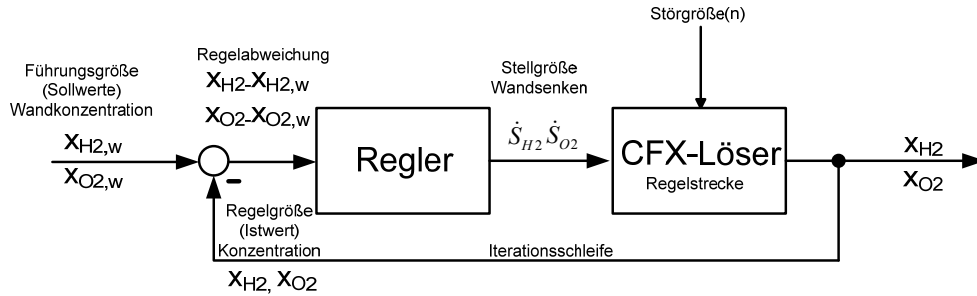


Abb. 5.7: Regelkreis zur Bestimmung der Transportraten

Die einfachste Implementierung ist eine proportionale Regelung. Hierbei werden die Senken- und Quellterme gemäß der Gleichung

$$\dot{S}_n = K_p \cdot (X_n - X_{n,w}) \quad \text{mit } n = H_2, O_2 \quad (5.27)$$

in jedem Iterationsschritt neu ermittelt. Sie ist einfach zu realisieren, hat jedoch den gravierenden Nachteil, dass die Regelung bei zu kleinem Regelfaktor K_p zu träge, bei zu großem Regelfaktor instabil wird. Zudem muss eine Regelabweichung $(x_n - x_{n,w}) \neq 0$ bleiben, da ansonsten gemäß Gl. 5.27 der Senken- bzw. Quellterm zu null wird. Die Höhe der Regelabweichung hängt wiederum vom gewählten Regelfaktor ab, so dass dieser die Lösung beeinflusst.

Um diese Nachteile auszuschließen wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit eine Fortran-Routine zur Stabilisierung der Senken- und Quellterme entwickelt und an CFX gekoppelt. Die Routine funktioniert gemäß der Gleichung

$$\dot{S}_n = K_I \cdot \int (X_n - X_{n,w}) dI \quad \text{mit } n = H_2, O_2 \quad (5.28)$$

wie ein integrierender Regler und bestimmt die Senken- und Quellterme durch Summation der Regelabweichung über den Iterationsfortschritt dI . D. h. der Quellterm baut auf dem Ergebnis der vorangegangenen Iterationsschritte auf und weicht nur gering vom vorherigen ab. Diese Implementierung beeinträchtigt somit nicht die numerische Stabilität des CFX-Lösers, z. B. durch sprunghafte Änderungen der Quellterme. Ebenfalls bleibt quasi keine Regelabweichung, der Quellterm gemäß Gl. 5.28 bei verschwindender Regelabweichung $(x_n - x_{n,w}) \sim 0$, im Gegensatz zur proportionalen Regelung, den Wert der vorherigen Iteration beibehält. Die Lösung ist daher unabhängig von der Reglerkonstante K_I .

Aufgrund der Limitierung der Reaktionsgeschwindigkeit durch den äußeren Stofftransport bei konventionellen Katalysatorbeschichtungen mit hohem Edelmetallgehalt wird davon ausgegangen, dass die Gasphasenkonzentration an den katalytisch aktiven Zentren nahezu null ist. Die Wandkonzentration der Reaktanden wird daher im Modell auf den geringen Wert von 100 ppm gesetzt.

5.2.2 Validierung der grundlegenden Reaktionskinetik

Zur Überprüfung der grundlegenden Reaktionskinetik wurden die Versuche von Drinovac [DRI05] und Schwarz [SCW09] an plattenförmigen Katalysatorelementen (vgl. Kap. 4.2.2) herangezogen. Neben der einfachen Geometrie und somit des einfachen Strömungsfelds eignen sich diese Versuchsreihen vor allem aufgrund ihrer gut bekannten Randbedingungen und des Detaillierungsgrads der Messungen für die Validierung des Reaktionsmodells im kleinen Maßstab.

Unter Nutzung translatorischer Periodizität entlang der Ausdehnung und Spiegelsymmetrie innerhalb des Strömungskanals zwischen den Blechen ergibt sich die in Abbildung 5.8 dargestellte 2D-Geometrie für die Rechnungen.

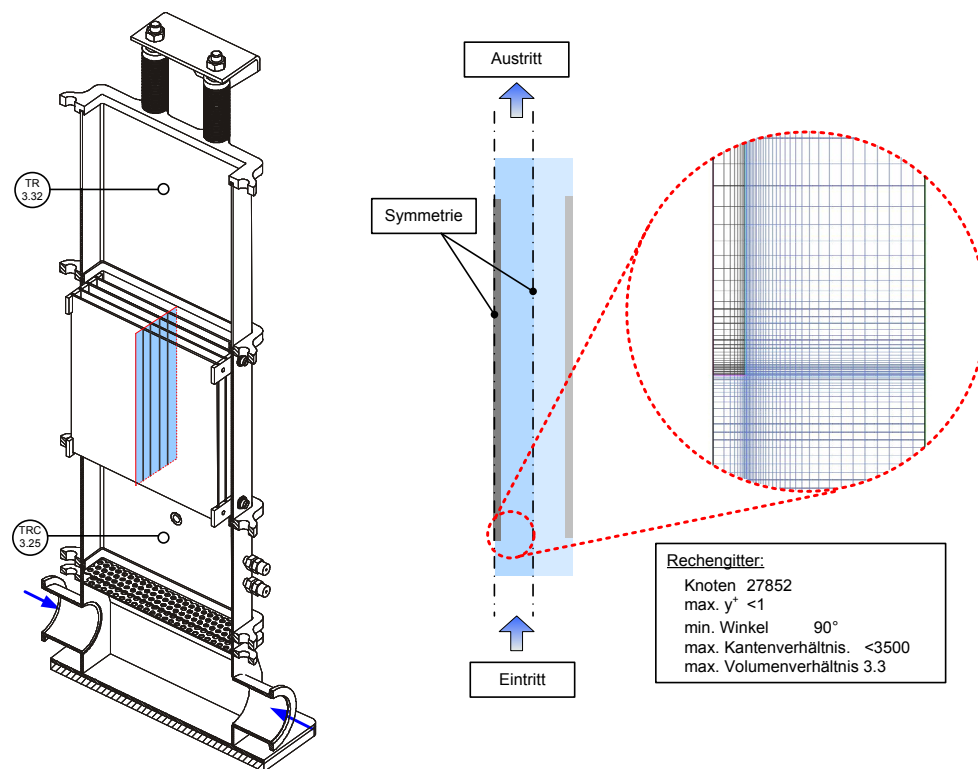


Abb. 5.8: 2D-Rechenmodell des Prüfstands REKO-3

Die Randbedingungen resultieren aus den experimentellen Daten (vgl. Abb. 4.4). Als Einströmrandbedingung wird ein gleichförmiges Strömungsprofil definiert, wobei der Betrag der Strömungsgeschwindigkeit aus den Normvolumenströmen der Durchflussregler (FRC 3.01-3.07) bei Eintrittstemperatur (TRC 3.25) berechnet wird. Die Turbulenzintensität wird zu 1 % angenommen, da aufgrund der dichten Netzpackung und der Einlaufstrecke von einer nahezu laminaren Anströmung der Katalysator-

platten und nur sehr kleinen Turbulenzskalen auszugehen ist. Die Gemischzusammensetzung errechnet sich aus den Volumenströmen der Durchflussregler. Als Ausströmrandbedingung wird ein relativer Gegendruck von 0 Pa definiert.

Zur Berücksichtigung des Strahlungswärmeaustauschs wird ein Monte-Carlo-Transportmodell [ANS07] verwendet. Als Schwarzkörpertemperaturen für den Strahlungswärmeaustausch wird im Eintritt der Wert des Thermoelements TRC 3.25 im Einlaufbereich des Prüfstands genutzt. An der Ausströmrandbedingung wird die Schwarzkörpertemperatur auf den Messwert des Thermoelements TR 3.32 gesetzt. Als Emissionsgrad wird aus den experimentellen Daten für die Katalysatorbeschichtung ein Wert von 0,7 und für die restlichen metallischen Strukturen ein Wert von 0,5 abgeschätzt. Eine Variation dieser Koeffizienten zeigt mitunter einen deutlichen Einfluss des Emissionsgrads der Katalysatoroberfläche auf die Temperaturprofile (siehe auch Kap. 5.4.2), wohingegen der Emissionsgrad der metallischen Strukturen sich kaum nennenswert auswirkt.

Zur Validierung des Modells werden die thermodynamischen Eigenschaften und die Transporteigenschaften des Gasgemischs und seiner Komponenten temperaturabhängig berücksichtigt. Eine Aufstellung der verwendeten Methoden zur Berechnung der Stoffdaten findet sich im Anhang 1.

Die Validierung des Reaktionsmodells erfolgt anhand der über die Katalysatorhöhe aufgenommenen Temperatur- und Konzentrationsprofile. Im Folgenden werden kurz charakteristische Ergebnisse für die rund 180 in Tabelle 4.3 aufgeführten Testfälle und Modellvorstellungen bzw. Validierungsrechnungen diskutiert. Unsicherheiten und Modellfehler werden abschließend in Kapitel 5.4 diskutiert.

Zum Vergleich der Konzentrationsprofile mit experimentellen Daten wird für die Daten von Drinovac [DRI05] ein Mittelwert über die Kanalbreite (gepunktete Linie) und für die Werte von Schwarz [SCW09] die Werte auf der Symmetrieebene (durchgezogene Linie) verwendet (vgl. Kap 4.2.2).

Unterstellt man, wie bei der hier beschriebenen Modellierung, eine durch den äußeren Stofftransport kontrollierte Reaktionskinetik, so hängt nach dem Filmmodell die Reaktionsgeschwindigkeit allein von der Diffusion der Reaktanden durch die Grenzschicht ab. Folglich wirkt sich eine Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit, und damit der Reynolds-Zahl, positiv auf den Stoffübergang aus, da sich die Grenzschichtdicke, und damit der Stofftransportwiderstand, reduzieren. Dieses Verhalten ist anhand gemessener und berechneter Katalysatortemperaturverläufe sowie H_2 -Konzentrationsprofile in Abbildung 5.9 dargestellt.

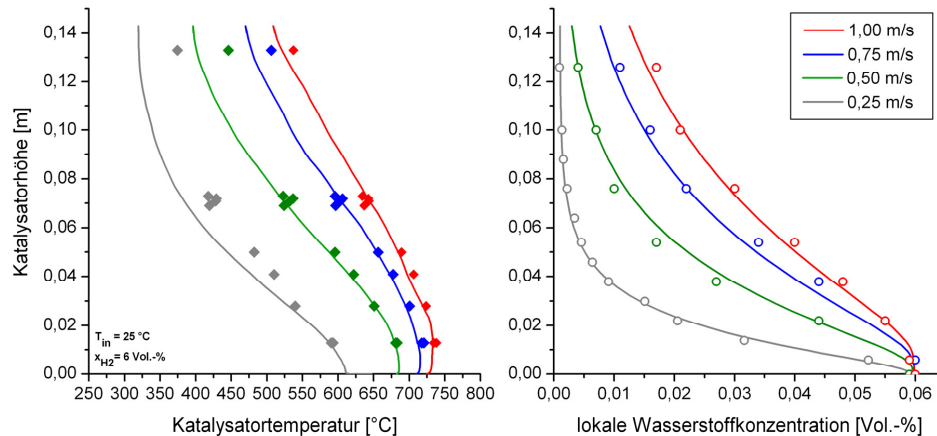


Abb. 5.9: Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit auf die Reaktionskinetik: Vergleich von Modell und Experiment [SCW 09]

Bedingt durch den sehr guten Stoffübergang im Anströmbereich des Katalysators ($< 4\text{ cm}$) ist dort die höchste Reaktionsrate, d. h. der höchste Konzentrationsgradient sowie das höchste Temperaturniveau, zu erkennen. Im weiteren Verlauf fallen Katalysatortemperatur und Konzentrationsgradient ab, was anhand des, mit der Grenzschichtdicke steigenden, Stofftransportwiderstands und dem abnehmenden Konzentrationsgradienten der Reaktanden zu erklären ist. Dieser qualitative Verlauf wird vom Modell für alle Testfälle sehr gut wiedergegeben. Der quantitative Vergleich zeigt eine gute Übereinstimmung in den Konzentrationsprofilen, was die Modellvorstellung einer stofftransportkontrollierten Reaktionskinetik bestätigt. Das Modell gibt das generelle Temperaturniveau für alle Messreihen gut wieder. Bei einigen Testfällen aus dem gesamten Parameterfeld sind jedoch lokale Abweichungen in den Temperaturprofilen (vgl. Abb. 5.9 - 0,25 m/s), insbesondere eine Unterschätzung der Temperaturen im Abströmbereich des Katalysatorblechs, zu erkennen. Diese sind vor allem auf Unsicherheiten im Wärmestrahlungsmodell sowie in den experimentellen Randbedingungen zurückzuführen (vgl. Kap. 5.4.2). Eine systematische Abweichung von der experimentellen Datenbasis ist nicht festzustellen.

Gemäß dem Fick'schen Gesetz ist der Diffusionsstrom direkt proportional zum Konzentrationsgradienten. Im Fall einer stofftransportbestimmten Kinetik ist daher ein signifikanter Einfluss der Konzentration der Reaktanden auf die Reaktionsrate zu erwarten. Abbildung 5.10 zeigt dies für eine sukzessive Erhöhung der Wasserstoffkonzentration von 1 Vol.-% bis 7 Vol.-% bei ansonsten konstanten Randbedingungen.

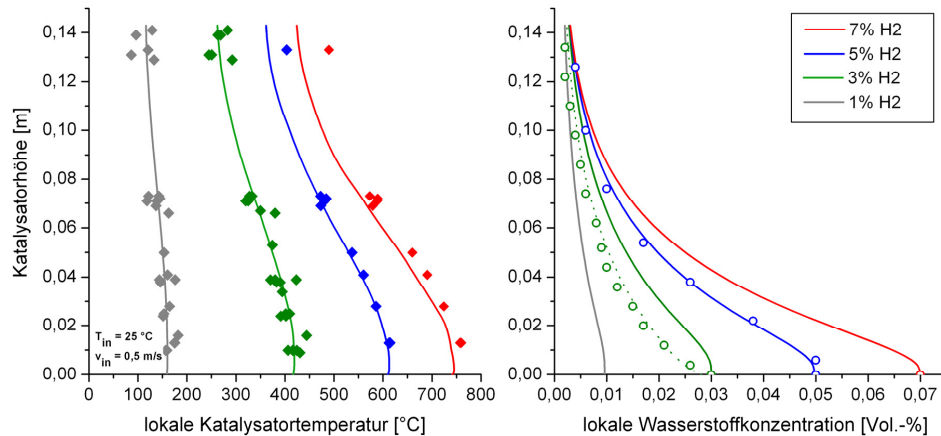


Abb. 5.10: Einfluss der H₂-Konzentration auf die Reaktionskinetik: Vergleich von Modell und Experiment [DRI 05, SCW 09]

Es ist, sowohl im Experiment als auch im Modell, ein deutliches Ansteigen der Reaktionsrate, d. h. der Katalysatortemperatur sowie der Konzentrationsgradienten mit zunehmender Wasserstoffkonzentration zu erkennen. Der quantitative Vergleich ergibt - wie schon zuvor beschrieben - für alle Testfälle eine gute Übereinstimmung der Konzentrationsprofile, und damit der berechneten Reaktionsraten, sowie des abgeschätzten Katalysatortemperaturniveaus. Die Unsicherheiten in den experimentellen Randbedingungen werden, betrachtet man die Streuung der Temperaturmesswerte (vgl. Abb.5.10 links – 1 Vol.-%, bzw. 3 Vol.-% H₂), bei wiederholten Messreihen mit ansonsten gleichen Randbedingungen deutlich. Auch für diese Einflussgröße kann keine systematische Abweichung zum Experiment festgestellt werden.

Wäre die Reaktionskinetik durch die Geschwindigkeit der Oberflächenreaktion begrenzt, so würde sich eine Erhöhung des Temperaturniveaus gemäß des Arrhenius-Ansatzes (vgl. Gl. 3.16) exponentiell auswirken, bei der Stofftransportkontrolle jedoch nur marginal über die Temperaturabhängigkeit der Stoffeigenschaften sowie der Diffusionskoeffizienten (vgl. Anhang 1). In Abbildung 5.11 ist dies für eine schrittweise Erhöhung der Gaseintrittstemperatur von Raumtemperatur (25°C) auf 110°C bei ansonsten konstanten Bedingungen dargestellt. Verglichen mit den Abbildungen 5.9 und 5.10 ist nur eine geringfügige Steigerung der Reaktionsrate, sowohl in den experimentellen Daten als auch im Modell, zu erkennen. Die Modellvorstellung bildet diesen Effekt demnach physikalisch korrekt ab.

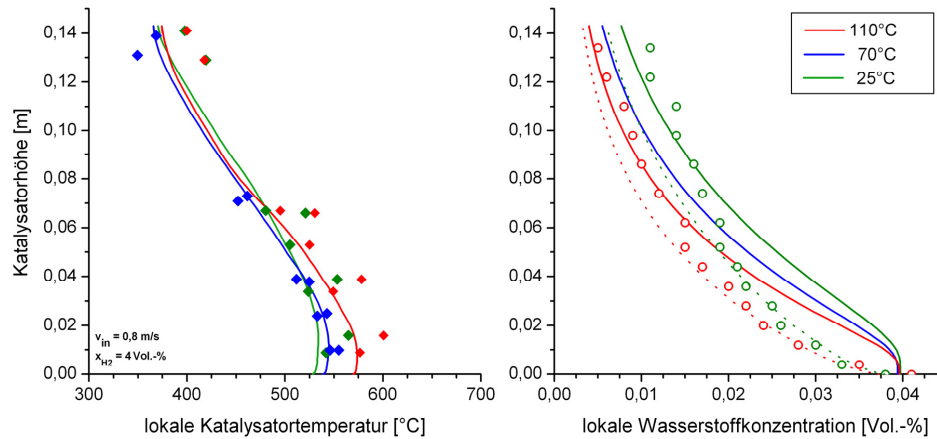


Abb. 5.11: Einfluss der Gaseintrittstemperatur auf die Reaktionskinetik: Vergleich von Modell und Experiment [DRI 05]

Ein quantitativer Vergleich des Modells mit den von Drinovac [DRI05] gemessenen Konzentrationsprofilen ist aufgrund der Unsicherheiten im Messaufbau (vgl. Kap. 4.2.2) schwierig. Es zeigt sich jedoch für die über die Kanalbreite gemittelten Konzentrationsverläufe (gestrichelte Linie) für alle Testfälle eine tendenzielle Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Die lokalen Katalysatortemperaturen werden vom Modell im Rahmen der Messgenauigkeit sowie der Unsicherheiten im Modell gut wiedergegeben. Bei höheren Gaseintrittstemperaturen ist eine leichte systematische Unterschätzung der Katalysatortemperaturen festzustellen. Diese ist insbesondere auf Unsicherheiten bei der Bestimmung der Eintrittstemperatur und damit auch der Strömungsgeschwindigkeit (siehe auch Kap. 5.4.2.) vor allem bei Versuchen mit vorgeheiztem Gasgemisch, zurückzuführen.

Die Zusammensetzung des Hintergrundgasgemisches beeinflusst vor allem den diffusiven Transport der einzelnen Reaktanden und wird im Modell mittels Bildung von binären Diffusionskoeffizienten der jeweiligen Spezies in der Mischung berücksichtigt (Gln. A14, A15). Wasserstoff hat in Wasserdampf einen geringfügig höheren Diffusionskoeffizienten als in Luft, so dass bei ansonsten gleichbleibenden Konzentrationen der Reaktanden gemäß dem Fick'schen Gesetz von einer mit der Wasserdampfkonzentration geringfügig zunehmenden Reaktionsrate auszugehen ist. Dieser Aspekt der Modellvorstellung wurde von Drinovac [DRI05] experimentell nachgewiesen und ist in Abbildung 5.12 anhand marginaler Unterschiede in den Temperatur- und Konzentrationsverläufen bei verschiedenen Dampfgehalten gut zu erkennen. Die Simulation zeigt ebenfalls keinen signifikanten Einfluss der Wasserdampfkonzentration auf die Reaktionsrate und bestätigt somit diesen Teilaspekt der Modellvorstellung.

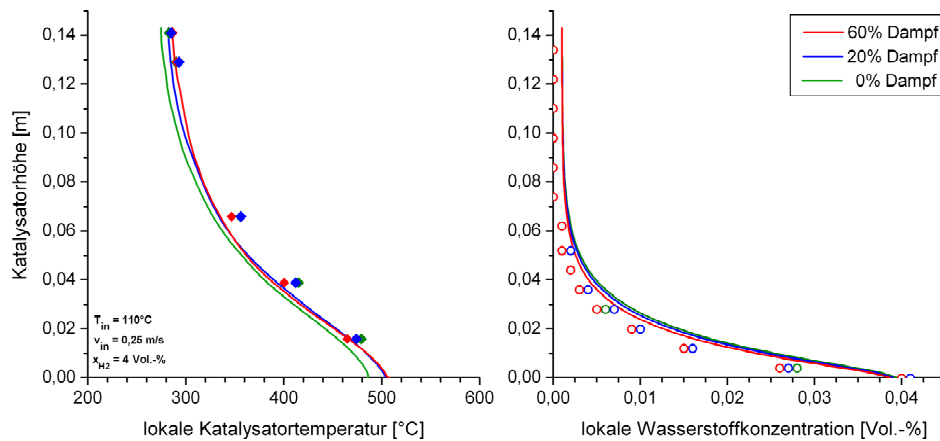


Abb. 5.12: Einfluss der Wasserdampfkonzentration auf die Reaktionskinetik: Vergleich von Modell und Experiment [DRI05]

Die Konzentrationsprofile geben die Messwerte auch quantitativ gut wieder was die konsistente Implementierung des Modells bestätigt. Anhand der Temperaturprofile lässt sich feststellen, dass das Temperaturniveau vom Modell generell gut vorhergesagt wird, jedoch eine geringfügige, systematische Unterschätzung der Katalysatortemperaturen vorliegt. Diese ist, analog zur Testreihe mit variabler Gas-temperatur, vor allem auf die Unsicherheiten bei der Bestimmung der Gaseintritts-temperatur zurückzuführen.

Bei den zuvor dargestellten Versuchsreihen liegt Sauerstoff stets im Überschuss vor. Unterhalb eines kritischen Sauerstoffpartialdrucks - und damit auch Konzentrationsgradienten - ist die Transportrate des Sauerstoffs zur Oberfläche geringer als die des Wasserstoffs. Dies führt zum Abnehmen der Reaktionsrate. Abbildung 5.13 vergleicht charakteristische Ergebnisse von Experiment und Rechnung. Anhand der experimentellen Ergebnisse ist zu erkennen, dass eine Reduktion des Sauerstoffanteils von 20 Vol.-% auf 5 Vol.-% quasi keinen Einfluss auf die Reaktionsrate hat, eine weitere sukzessive Reduktion jedoch zur Verringerung des Wasserstoffumsatzes führt. Im Modell wird sowohl die Wasserstoff- als auch die Sauerstoff-Transportrate berechnet und der lokale Überschuss eines Reaktanden durch Berücksichtigung der lokal geringeren Transportrate (vgl. Gl. 5.21) abgebildet. Der Vergleich von Experiment und Simulation zeigt dass der Effekt der Sauerstoffverarmung für alle Messpunkte der Versuchsreihe konsistent abgebildet wird. Insbesondere der Umschlag in den sauerstoffbegrenzten Bereich wird korrekt wiedergegeben.

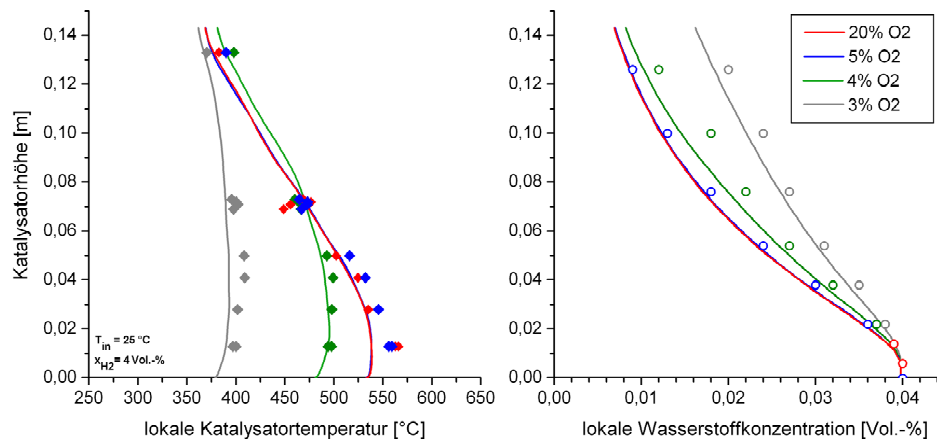


Abb. 5.13: Einfluss der Sauerstoffverarmung auf die Reaktionskinetik: Vergleich von Modell und Experiment [DRI05, SCW09]

Vergleicht man die Katalysatortemperatur- und Konzentrationsprofile mit den gemessenen Werten, ist für alle Testfälle eine gute Übereinstimmung des abgeschätzten Temperaturniveaus sowie der Reaktionsraten festzustellen. Bei den lokalen Abweichungen zwischen Experiment und Modell ist keine Systematik festzustellen, so dass hierbei von Unsicherheiten in den Randbedingungen sowie des Wärmestrahlungsmodells ausgegangen werden kann.

Anhand der bisher beschriebenen Versuchsreihen wurden die Reaktionskinetik und der Wärmetransport gemeinsam validiert. Zur separierten Überprüfung des Wärmetransportmodells wurde eine Testreihe mit teilbeschichteten Katalysatorblechen gewählt. Bei diesen Versuchen sind die unteren 30 mm der Katalysatorplatte unbeschichtet und wirken daher wie eine Kühlrippe. Am Übergang zwischen unbeschichtetem Streifen und Katalysator stellt sich aufgrund des sehr guten Stoffübergangs die höchste Reaktionsrate und damit auch das höchste Temperaturniveau ein. Die Reaktionswärme wird in diesem Fall nur durch Wärmeleitung und Wärmestrahlung in den unbeschichteten Teil transportiert. Abbildung 5.14 zeigt charakteristische Ergebnisse für die gemessenen und gerechneten Temperaturprofile. Es zeigt sich - vor allem auch im unbeschichteten Teil - eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentell bestimmten Temperaturprofilen. Die Konzentrationsprofile weichen jedoch in allen Testfällen signifikant von den experimentell ermittelten ab. Diese Abweichung ist basierend auf der guten Abschätzung der Reaktionsraten bei den zuvor simulierten Testreihen sowie der auch lokal sehr gut abgeschätzten Katalysatortemperaturen nicht erklärbar. Eine Wiederholung dieser Versuche zur Bestätigung der experimentellen Werte wird empfohlen, ist jedoch für die generelle Zielsetzung dieser Arbeit nicht erforderlich.

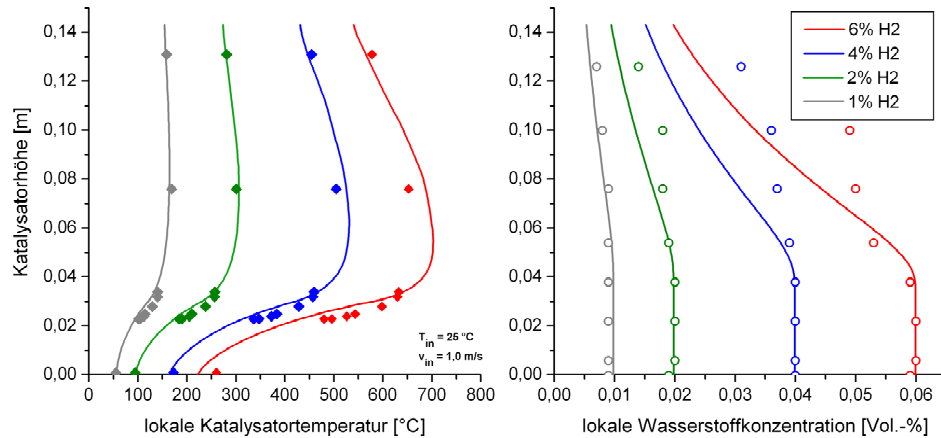


Abb. 5.14: Validierung Wärmetransport: Versuch und Experiment bei teilbeschichteten Platten [GRS08]

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass das implementierte Rechenmodell alle relevanten Einflüsse auf die Reaktionskinetik, d. h. der Einfluss der Thermohydraulik, der Konzentrationen der Reaktanden sowie der Zusammensetzung des Hintergrundgasmischs, verglichen mit der experimentellen Datenbasis und den Ergebnissen der vorangegangenen Arbeiten von Drinovac [DRI05] und Schwarz [SCW09] physikalisch korrekt abbildet. Im quantitativen Vergleich ist für alle ca. 180 berechneten Testfälle sowohl eine Streuung der experimentellen Daten (vgl. Tab. 4.3) sowie leichte Unter- bzw. Überschätzungen des Modells festzustellen. Eine geringe systematische Abweichung tritt nur bei höheren Gaseintrittstemperaturen aufgrund von Unsicherheiten in der Bestimmung der im Experiment vorliegenden Gaseintrittstemperatur auf. Eine zusammenfassende Diskussion der Fehlerquellen findet sich in Kap. 5.4. Die erreichte Genauigkeit lässt belastbare Aussagen für die Zielsetzung dieser Arbeit zu.

5.2.3 Reaktionskinetik am umströmten Zylinder

Die Übertragbarkeit des Reaktionskinetikmodells auf zylindrische Geometrien wird an den Versuchsreihen mit einem ungekühlten rohrförmigen Katalysatorelement (vgl. Tab. 4.4) überprüft. Hierzu wird unter Berücksichtigung von translatorischer Periodizität über die Tiefe des Strömungskanals das in Abbildung 5.15 dargestellte 2D-Rechengitter verwendet.

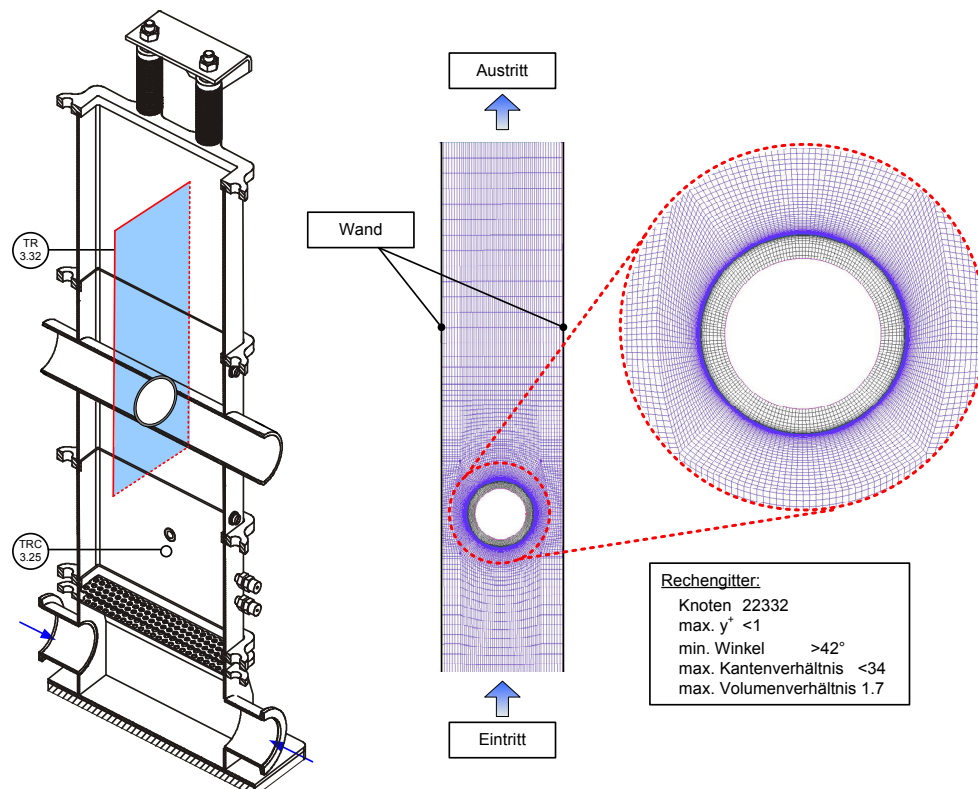


Abb. 5.15: 2D-Rechenmodell zur Nachrechnung der ungekühlten Versuche am zylindrischen Katalysatorelement

Die Ein- und Ausströmrandbedingungen werden analog zum Modell mit plattenförmigen Katalysatorelementen aus den experimentellen Bedingungen ermittelt. Wärmeverluste durch die Wand des Strömungskanals werden mit einem äußeren Wärmeübergangskoeffizienten von $5 \text{ W/m}^2\text{K}$ und einer Raumtemperatur von 22°C abgebildet.

Bei der Umströmung eines Zylinders prägt sich eine Karman'sche Wirbelstraße aus [DUR06]. Diese instationären, periodischen Strömungsablösungen haben signifikanten Einfluss auf den Stofftransport im Abströmbereich des Zylinders.

Die Berechnungen wurden daher instationär mit Zeitschrittweiten zwischen 10^{-3} - 10^{-2} s durchgeführt, um diesen Einfluss auf die lokalen Reaktionsraten zu erfassen.

Abbildung 5.16 zeigt den Vergleich der gemessenen und der berechneten Temperaturprofile in der Rohrmitte. Der Umfangswinkel wird hierbei vom Staupunkt ausgehend in beide Drehrichtungen gemessen. Am Staupunkt ist die höchste Reaktionsrate und somit auch die höchste Katalysatortemperatur festzustellen. Dies lässt sich mit dem dort sehr guten Stoffübergang erklären. Mit zunehmendem Umfangswinkel nimmt die Reaktionsrate aufgrund des mit der Grenzschichtdicke zunehmenden Stofftransportwiderstands ab. Im Bereich zwischen -135° und $+135^\circ$ (vgl. Abb. 5.16 links) löst sich die Strömung periodisch ab. Hier sind sowohl Wärme- als auch Stoffübergang am schlechtesten und somit auch die geringsten Temperaturen (d. h. Reaktionsraten) zu messen.

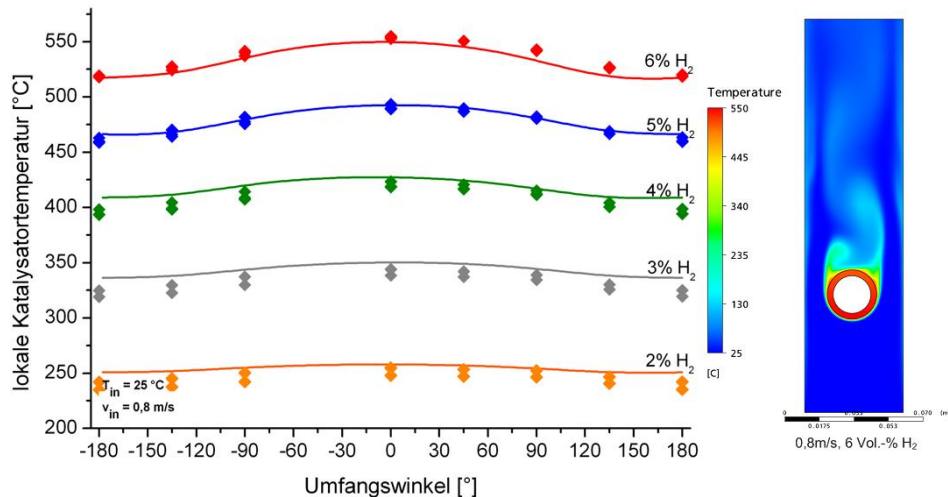


Abb. 5.16: Übertragung auf zylindrische Geometrie: Katalysatortemperatur im ungekühlten Rohr

Das Modell gibt für alle Testfälle (vgl. Tab. 4.5) sowohl das Temperaturniveau als auch den Verlauf der Katalysatortemperaturen gut wieder. Die im vorangegangenen Kapitel beschriebenen, für eine stofftransportlimitierte Reaktionskinetik charakteristischen Einflüsse der Strömungsgeschwindigkeit und Wasserstoffkonzentration, finden sich auch bei der vorliegenden Geometrie wieder.

Zur Überprüfung der globalen Ergebnisse, z. B. der integralen Reaktionsrate, werden die am Austrittsrand berechneten Ergebnisse über den Massenstrom nach der Vorschrift

$$\Phi = \frac{\int \Phi d\dot{m}}{\int d\dot{m}} \quad (5.29)$$

gemittelt und den experimentellen Werten gegenübergestellt. In Abbildung 5.17 sind beispielhaft die gemittelten Werte der Wasserstoffaustrittskonzentration und Gasaustrittstemperatur für Modell und Experiment gegenübergestellt. Die Linie stellt hierbei die Winkelhalbierende, also die Übereinstimmung zwischen Modell und Experiment, dar.

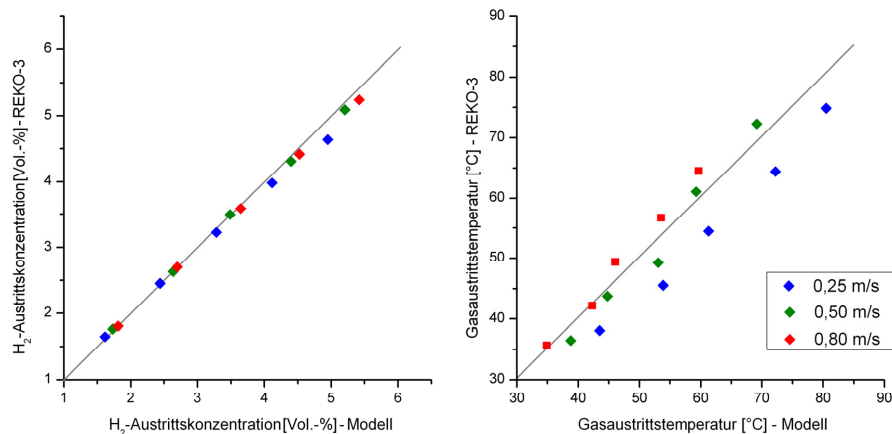


Abb. 5.17: Übertragung auf zylindrische Geometrie: Vergleich integraler Werte

Für alle gemessenen und berechneten Wasserstoffaustrittskonzentrationen ist eine gute Übereinstimmung erkennbar. Die mittleren Austrittstemperaturen streuen um die Winkelhalbierende, jedoch ist keine systematische Abweichung feststellbar.

Das Modell gibt somit ohne weitere Modifikation sowohl das gemessene Katalysatortemperaturprofil als auch integrale Werte, wie die mittlere Gasaustrittstemperatur oder -konzentration, gut wieder. Dies bestätigt somit die Annahme, dass die grundlegende und bereits an plattenförmigen Katalysatorelementen nachgewiesene Modellvorstellung einer stofftransportkontrollierten Reaktionskinetik auch auf eine zylindrische Geometrie übertragen werden kann.

Im Rahmen der Versuchsreihen mit gekühltem Katalysator konnte kein Einfluss der Kühlung auf die Reaktionskinetik im vorgesehenen Betriebsbereich festgestellt werden. Oberhalb einer mittleren Katalysatortemperatur von 80-100°C (vgl. Abb. 4.8) wird die Reaktionskinetik durch den äußeren Stofftransport bestimmt. Dies wird durch Nachrechnungen mit einem detaillierten CFD-Modell (vgl. Anhang 2) bestätigt.

Bei der Betrachtung eines kombinierten Rekombinator/Kondensator-Systems müssen zur Vermeidung von Wandkondensation an den Katalysatorelementen Temperaturen oberhalb von 100°C vorliegen. Basierend auf diesen Ergebnissen ist daher davon auszugehen, dass die Annahme einer diffusionskontrollierten Reaktionskinetik für diesen Anwendungsfall gerechtfertigt ist, und das Modell für den vorgesehenen Betriebsbereich belastbare Ergebnisse liefert.

5.3 Modellierung der Wandkondensation in Anwesenheit nichtkondensierbarer Gase

In der Literatur existieren verschiedene Werke, die die Phänomenologie der Wandkondensation und ihre modellmäßige Beschreibung zusammenfassen. Beispielhaft sei an dieser Stelle auf die Aufsätze von de la Rosa et al. [ROS09], Ambrosini et al. [AMB08] und Karl [KAR88] verwiesen, die dieser Arbeit zugrunde liegen. Der hier vorgestellte Ansatz zur Modellierung von Wandkondensation im Beisein nichtkondensierbarer Gase wurde im Rahmen des Condensation Benchmark [AMB07] im SARNET-Arbeitspaket 12.2 „Containment Atmosphere Mixing“ erstellt und einer ersten Validierung unterzogen.

5.3.1 Implementierung des Kondensationsmodells

In ANSYS CFX 11 [ANS07] sind bereits detaillierte Modelle zur Beschreibung disperser oder geschichteter Mehrphasenströmungen implementiert. Diese Modelle bilden jede Phase als Kontinuum mit separaten Geschwindigkeits- und Temperaturfeldern ab, d. h. für jede Phase wird ein separates RANS-Gleichungssystem gelöst, wobei Phasenübergänge mittels konsistenter Senken- und Quellterme in den Kontinuitätsgleichungen der flüssigen und gasförmigen Phase abgebildet werden. Eine weitere Zustandsgleichung beschreibt hierbei die Lage des Phasengleichgewichts. Diese Modelle können modifiziert und zur Berechnung von Wandkondensation verwendet werden. Jedoch ist dies mit großem numerischen Aufwand verbunden, da zum einen die Phasengrenzfläche sehr fein diskretisiert und zum anderen ein doppelt so großes, gekoppeltes Gleichungssystem gelöst werden muss.

Wie in Kapitel 3.3 bereits verdeutlicht, wird Wandkondensation in Anwesenheit nichtkondensierbarer Gase durch den Stofftransport des Wasserdampfs an die Phasengrenze bestimmt. Experimentelle und analytische Untersuchungen [ROS09] zeigen, dass der Temperaturgradient im fallenden Kondensatfilm an einer senkrechten Wand kleiner als 0,4 K ist und der Wärmetransportwiderstand weniger als 5 % des integralen Wärmeübergangskoeffizienten ausmacht. Auch fließt der Kondensatfilm im Falle von freier Konvektion laminar ($Re_F < 30$) ab, so dass der Reibung zwischen den Phasen nur eine untergeordnete Rolle zukommt.

Bei hohen Dampfkonzentrationen und hohen Temperaturgradienten (> 70 K [ROS09], > 60 K [BRO91]) zwischen Wand und Bulk treten in der Grenzschicht lokal übersättigte Dampfzustände auf, die zur Volumenkondensation führen. Dies führt zur Reduktion des Wärmeübergangs durch Wandkondensation: Diese Zustände treten vor allem bei großen Lecks (Blow-down) im Bruchraum und seiner Umgebung auf.

Basierend auf diesem Modellverständnis wird in dieser Arbeit der Kondensatfilm und die Volumen Kondensation vernachlässigt und Wandkondensation einphasig mittels eines Stofftransportansatzes abgebildet. Zur Implementierung in CFX sind prinzipiell zwei Ansätze möglich [AMB06]. Die Verwendung bekannter empirischer Beziehungen zur Berechnung der Kondensationsrate ermöglicht eine effiziente Rechnung. Jedoch ist die Definition der entsprechenden globalen Bulk-Werte mit Fehlern verbunden, da die in einer CFD-Rechnung zur Verfügung stehenden dreidimensionalen Felder der Strömungsvariablen nicht bei der Berechnung der Kondensationsraten berücksichtigt werden [AMB09]. Dies kann lokal eine inkonsistente physikalische Lösung zum Ergebnis haben. Ein weiterer Nachteil ist die Geometrieabhängigkeit dieser Beziehungen. Die zweite Möglichkeit ist die Abbildung des Stofftransports über eine Transportgleichung und die Verwendung eines low-Reynolds-Ansatzes. Dies schlägt jedoch negativ in den Rechenzeiten zu Buche, da in Wandnähe eine feine Diskretisierung der Grenzschicht erforderlich ist, um Unsicherheiten aufgrund der Verwendung von Wandfunktionen zu vermeiden.

Trotzdem wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit, vor allem aufgrund der Übertragbarkeit des Modells auf andere Geometrien, die zweite Möglichkeit gewählt. Die zugrunde gelegte Vereinfachung und modellmäßige Erfassung ist in Abbildung 5.18 zusammenfassend dargestellt.

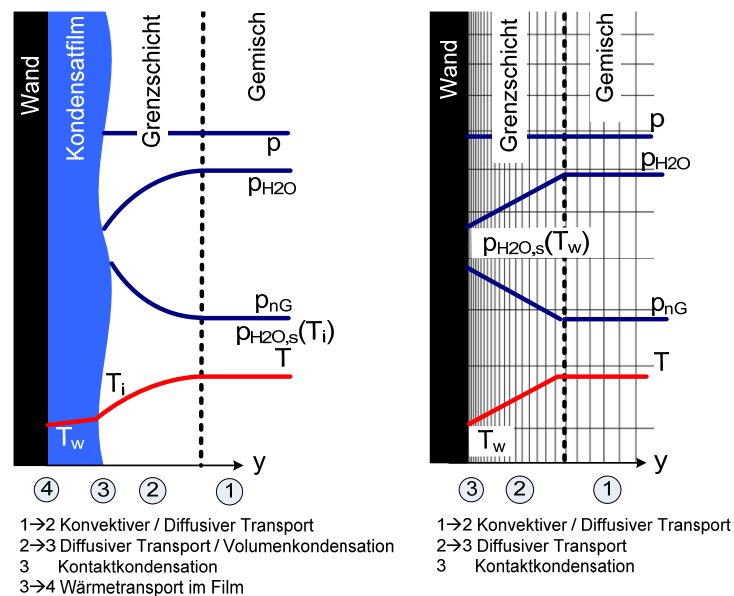


Abb. 5.18: Wandkondensation in Anwesenheit nichtkondensierbarer Gase: Theorie und Modellvereinfachung

Die Strömung wird durch ein System von kompressiblen RANS-Gleichungen beschrieben und der Transport des Wasserdampfs und der nichtkondensierbaren

Gase (nG) mittels einer Transportgleichung für den Massenbruch (Gl. 5.6) abgebildet. Die Wand wird hierbei als dampfdurchlässig modelliert.

Betrachtet man die Transportgleichungen an der Phasengrenzfläche bzw. der Wand, so vereinfacht sich, unter Annahme von thermodynamischem Gleichgewicht zwischen den Phasen, die Transportgleichung für den Dampf :

$$\frac{\partial}{\partial y}(\bar{\rho} \tilde{Y}_{H_2O}) = \frac{\partial}{\partial y} \left(\bar{\rho} D_{H_2O} \frac{\partial \tilde{Y}_{H_2O}}{\partial y} \right) + \overline{\dot{w}_{H_2O}}. \quad (5.30)$$

Hierbei entspricht der Senkenterm \dot{w}_{H_2O} der Kondensationsrate in der wandnahen Zelle. Der konvektive Term berücksichtigt den einseitigen Diffusionsprozess, also den Verlust von Masse durch die dampfdurchlässige Wand. Da die Wand bzw. die Phasengrenzfläche für nichtkondensierbares Gas undurchlässig ist, entfällt der Senkenterm in der Bilanzgleichung für die nichtkondensierbaren Gase:

$$\frac{\partial}{\partial y}(\bar{\rho} \tilde{Y}_{nG}) = \frac{\partial}{\partial y} \left(\bar{\rho} D_{nG} \frac{\partial \tilde{Y}_{nG}}{\partial y} \right). \quad (5.31)$$

Für die Massenanteile in einem Gemisch gilt der folgende Zusammenhang:

$$\tilde{Y}_{H_2O} + \tilde{Y}_{nG} = 1 \quad \Leftrightarrow \quad \frac{\partial \tilde{Y}_{H_2O}}{\partial y} + \frac{\partial \tilde{Y}_{nG}}{\partial y} = 0. \quad (5.32)$$

Fasst man die Gleichungen 5.30-5.32 zusammen, ergibt sich für die lokale Kondensationsrate und damit den Senkenterm:

$$\overline{\dot{w}_{H_2O}} = \frac{1}{1 - Y_{H_2O,w}} \left(\bar{\rho} D_{H_2O} \frac{\partial \tilde{Y}_{H_2O}}{\partial y} \right)_w. \quad (5.33)$$

Hierbei wird der Massenbruch des Dampfes an der Wand $Y_{H_2O,w}$ bei Sättigungsbedingung bestimmt:

$$Y_{H_2O,w} = \frac{p_{H_2O,s}(T_w)}{p} \cdot \frac{M_{H_2O}}{\bar{M}}. \quad (5.34)$$

Hierbei ist \bar{M} die molare Masse des Gasgemischs. Der Sättigungsdampfdruck $p_{H_2O,s}(T_w)$ wird mittels der Antoine Gleichung [POL01] ermittelt:

$$p_{H_2O,s}(T_w) = 133,28 [Pa] \cdot e^{\left(18,3036 - \frac{3816,44 [K]}{T - 46,13 [K]} \right)}. \quad (5.35)$$

Der Senkenterm wird zusätzlich zur Transportgleichung für den Dampf auch in die Kontinuitätsgleichung eingesetzt, da durch die dampfdurchlässige Wand dem System Masse entzogen wird.

Die zugehörige fühlbare Wärme des abgezogenen Wassermassenstroms wird von CFX automatisch durch eine Senke in der Energiegleichung abgezogen. Da die Wand die latente Wärme $\Delta h_{lat}(T)$ ebenfalls abführen muss, wird diese über eine Quelle in der Energiegleichung in der wandnahen Zelle freigesetzt:

$$\dot{S}_m = \overline{\dot{w}_{H_2O}}, \quad (5.36)$$

$$\dot{S}_E = \overline{\dot{w}_{H_2O}} \cdot \Delta h_{lat}(T). \quad (5.37)$$

Dieser Transportansatz wird in CFX – analog zum Reaktionsmodell – als Regelkreis (vgl. Abb. 5.19) implementiert. Hierbei wird die Wandsenke \dot{S}_m (Stellgröße) durch einen geeigneten Regler derart bestimmt, dass die Konzentration in den wandnahen Zellen (Regelgröße) der Sättigungsdampfkonzentration (Führungsgröße) entspricht. Im eingeregelter Zustand entspricht der Senkenterm dann der zur Wand transportierten Dampfmenge, also der Kondensationsrate.

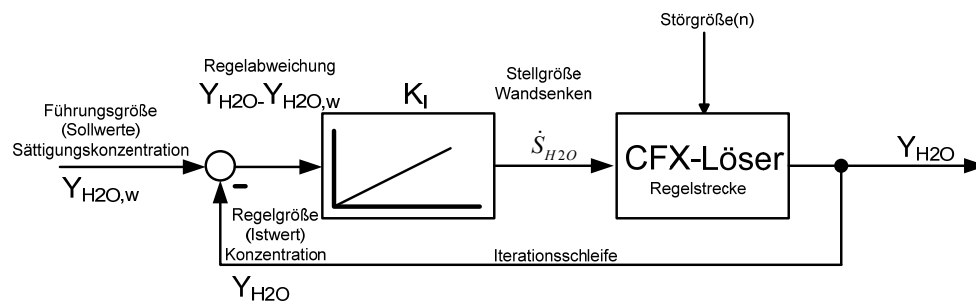


Abb. 5.19: Regelkreis zur Bestimmung der lokalen Kondensationsraten

Zur Stabilisierung der Senken- und Quellterme wird ein integrierender Regler mittels einer an CFX gekoppelten Fortran-Routine realisiert. Der Einfluss der verschiedenen nichtkondensierbaren Gase wird gemäß Peterson [PET00] über die Stoffeigenschaften der Mischung (vgl. Anhang 1) erfasst.

5.3.2 Validierung des Kondensationsmodells

Eine erste Überprüfung des Kondensationsmodells erfolgt anhand des SARNET Condensation Benchmark-run0 [AMB07]. Mittels idealisierter Randbedingungen wurde zunächst ein Code-to-Code Vergleich mit den Modellen der SARNET-Partner durchgeführt, um die Implementierung in Bezug auf lokale Größen sowie die integrale Kondensationsrate zu überprüfen. Als Referenz für alle beteiligten Modelle wurde die gut bekannte Korrelation für den Wärme- und Stofftransport an einer ebenen Platte unter Zwangskonvektion genutzt.

Für den Benchmark wurde unter Annahme von translatorischer Periodizität das in Abb. 5.20 dargestellte zweidimensionale Rechengitter verwendet, wobei im ersten Schritt des Benchmarks die Al-5083-Platte nicht berücksichtigt wurde.

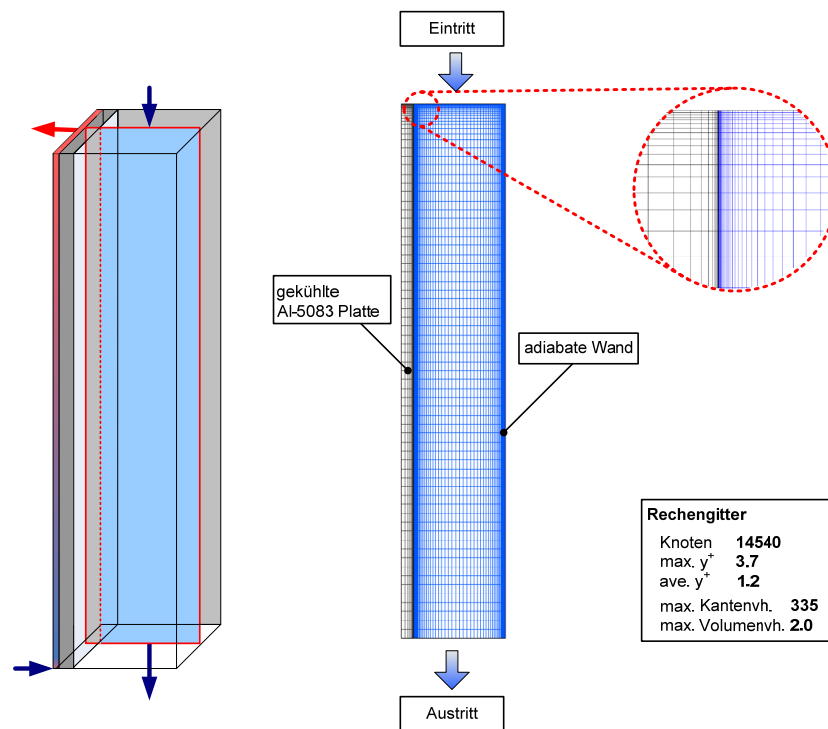


Abb. 5.20: 2D-Rechengitter der CONAN-Anlage

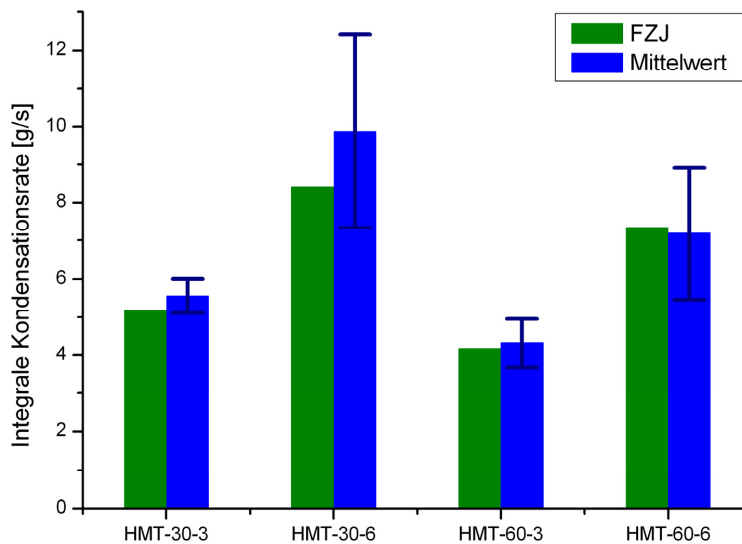
Das gesättigte Gasgemisch tritt an der Oberseite mit der Geschwindigkeit v_{in} , der konstanten Temperatur $T_{in} = 363K$ und einem gleichmäßigen flachen Geschwindigkeits-, Temperatur- und Konzentrationsprofil in den Kanal ein und strömt abwärts. Die Turbulenzintensität am Einströmrand wird auf den festen Wert von 2 % definiert, ihr Längenmaß zu 3 mm. Die gekühlte Wand hat dabei idealerweise eine gleichmäßige konstante Temperatur T_{wand} . Der Systemdruck entspricht für alle Testfälle dem Atmosphärendruck (101325 Pa). Als Ausströmrandbedingung wird ein relativer Gegendruck von 0 Pa definiert. Die gekühlte Wand stellt die einzige Wärmesenke dar, alle anderen Wände sind adiabat. Die Einströmrandbedingungen sind in Tabelle 5.3 zusammengefasst. Die Transport- und thermodynamischen Eigenschaften werden temperaturabhängig berücksichtigt. Eine Aufstellung der verwendeten Methoden zur Berechnung der Stoffdaten findet sich im Anhang.

Im Code-to-Code-Vergleich zeigte sich unter den Teilnehmern mit einem vergleichbaren Transportmodell eine generelle Übereinstimmung der lokalen Temperatur-, Konzentrations- und Geschwindigkeitsprofile.

Testfall	v_{in} [m/s]	T_{Wand} [K]	Feuchte [%]
HMT-30-3	3	303,15	100
HMT-30-6	6	303,15	100
HMT-60-3	3	333,15	100
HMT-60-6	6	333,15	100

Tab. 5.3: Einströmrandbedingungen für den run0

Die mit dem in Kapitel 5.3.1 skizzierten Ansatz berechneten integralen Kondensationsraten (umgerechnet auf 0,34 m Referenztiefe) liegen wie in Abbildung 5.21 dargestellt im Benchmarkmittel. Die Fehlerbalken geben die Standardabweichung zwischen den Ergebnissen der 14 teilnehmenden Organisationen an.



Tab. 5.21: Code-to-Code-Vergleich der berechneten integralen Kondensationsrate beim run0

Zum Vergleich der lokalen Kondensationsraten wurde die Sherwood-Zahl mit dem folgenden Ansatz aus den numerisch gewonnenen lokalen Kondensationsraten ermittelt:

$$Sh_x^{CFD} = \frac{\dot{m}_{cond,x}''}{M_{H_2O} \frac{c D_{H_2O}}{x} \cdot \ln\left(\frac{X_{nG,bulk}}{X_{nG,wall}}\right)} \quad (5.38)$$

Hierbei sind c die molare Konzentration des Gemischs, D_{H_2O} der Diffusionskoeffizient von Wasserdampf im Gasgemisch und X_{nG} der Volumenanteil der nichtkondensierbaren Gase. Die lokale Reynolds-Zahl errechnet sich zu

$$\text{Re}_x^{\text{CFD}} = \frac{\rho \cdot v_{in} \cdot x}{\mu}, \quad (5.39)$$

wobei x die Lauflänge über die Platte berücksichtigt.

Zur Ableitung der lokalen Sherwood- bzw. Reynolds-Zahlen wurden die Stoffdaten gemäß Incropera und de Witt [INC02] bei der entsprechend

$$T_{film} = \frac{T_{bulk} + T_w}{2} \quad (5.40)$$

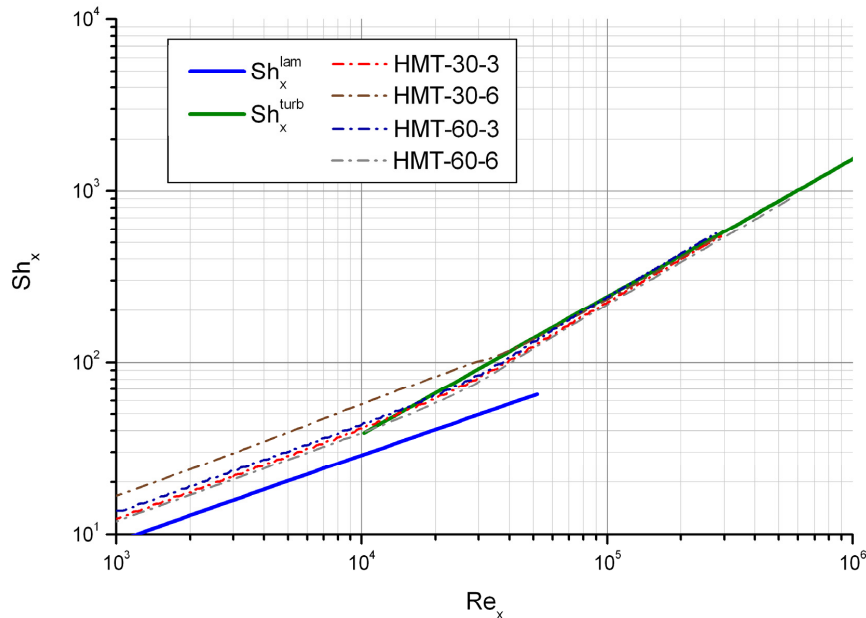
bestimmten Filmtemperatur berechnet.

Als Maßstab wurden die bekannten Korrelationen für den Wärme- bzw. Stoffübergang an einer ebenen Wand [VDI05] verwendet. Eine Korrektur für hohe Dampfanteile ist bei den vorliegenden Dampfkonzentrationen bzw. geringen Kondensationsraten nicht erforderlich [BUC08]:

$$\text{Sh}_x^l = 0,332 \text{Re}_x^{0,5} \text{Sc}^{0,33}, \quad \text{für } \text{Re}_x < 5 \cdot 10^5, \quad (5.41)$$

$$\text{Sh}_x^l = 0,0296 \text{Re}_x^{0,8} \text{Sc}^{0,43}, \quad \text{für } 1 \cdot 10^4 < \text{Re}_x < 10^7. \quad (5.42)$$

Wie aus Abbildung 5.22 gut zu erkennen ist, gibt das Kondensationsmodell den prinzipiellen Verlauf der Sherwood-Zahl, sowie den Umschlag von laminarer zu turbulenter Strömung bei einer Reynolds-Zahl zwischen 10^4 - $5 \cdot 10^5$ gut wieder. Dies bestätigt die konsistente Implementierung des Stofftransportansatzes.



Tab. 5.22: Vergleich der berechneten lokalen Kondensationsraten mit ingenieurtechnischen Korrelationen

Im zweiten Schritt, dem SARNET Condensation Benchmark-run1 [AMB08], erfolgte die Validierung anhand experimenteller Daten von der CONAN-Anlage für ein Wasserdampf/Luft-Gemisch (vgl. Kapitel 4.1). Für diese Berechnungen wurde das in Abbildung 5.20 dargestellte Gitter verwendet und auch der Wärmetransport in der gekühlten Al-5083 Platte abgebildet. Da der Hauptwiderstand für die Kondensation durch den Stofftransport dargestellt wird, wird der Wärmeabtransport über den sekundären Kreislauf jedoch nur mittels eines Wärmeübergangskoeffizienten sowie der sekundärseitigen Temperatur abgebildet. Aufgrund der geringen Aufheizspanne des Kühlmediums ($\Delta T < 1$ K, vgl. Tab. 5.4) wird vereinfachend von einer linearen Aufheizung ausgegangen.

Der sekundärseitige Wärmeübergangskoeffizient α_{sek} wird gemäß der Dittus-Boelter Korrelation [INC02] abgeschätzt zu

$$Nu = \frac{\alpha_{\text{sek}} d_h}{\lambda} = 0,023 Re_d^{0,8} Pr^n. \quad (5.43)$$

Der Koeffizient n hat hierbei für eine beheizte Wand den Wert $n = 0,4$. Die Reynolds-Zahl berechnet sich gemäß der Beziehung

$$Re_d = \frac{\nu \rho d_h}{\mu}, \quad d_h = \frac{4A}{U} \quad (5.44)$$

mit der gekühlten Fläche A .

Zusammengefasst ergeben sich die in Tab. 5.4 aufgeführten Randbedingungen. Für die Turbulenzintensität am Einströmrand wird ein Wert von 10% gesetzt.

Testfall	v_{in} [m/s]	Feuchte [%]	T_{in} [°C]	$T_{\text{sek,ein}}$ [°C]	$T_{\text{sek,aus}}$ [°C]	α_{sek} [W/m²K]
P10-T30-V15	1,46	100,00	82,66	31,24	32,49	4038,2
P10-T30-V20	2,02	100,00	80,61	31,10	32,43	4034,7
P10-T30-V25	2,52	97,83	79,13	31,07	32,48	4033,6
P10-T30-V30	3,01	87,35	77,95	30,91	32,32	4025,5
P10-T30-V35	3,59	96,55	74,86	30,71	32,23	4019,6

Tab. 5.4: Randbedingungen für den Condensation Benchmark - run1

In Bezug auf die integralen Kondensationsraten (umgerechnet auf 0,34 m Referenztiefe) zeigt sich, verglichen mit den experimentellen Daten, eine geringe Unterschätzung der Kondensationsraten (vgl. Abb. 5.23 rechts). Dies wurde bei allen Teilnehmern des Benchmarks beobachtet und übereinstimmend auf eine systematische Unterschätzung der lokalen Kondensationsraten, gerade im Bereich des Einlaufs, zurückgeführt [AMB08].

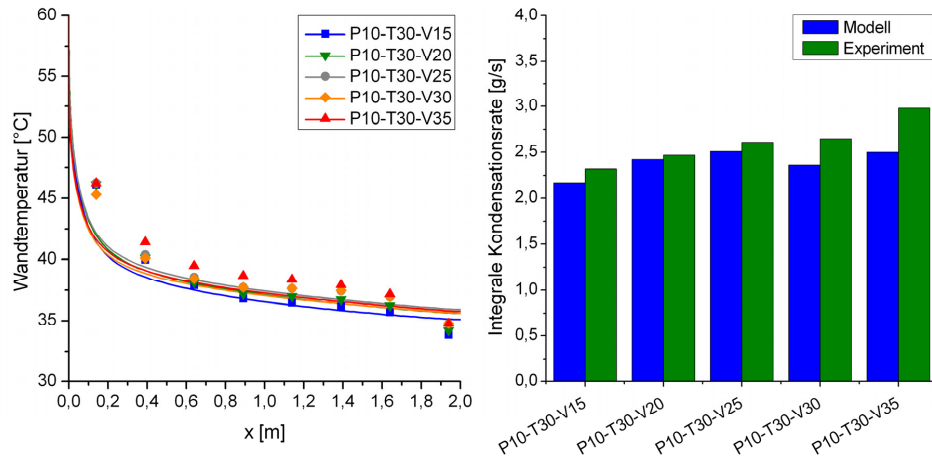


Abb. 5.23: Vergleich der berechneten und gemessenen Wandtemperaturprofile und integralen Kondensationsraten [AMB08]

Abbildung 5.23 (rechts) und 5.24 verdeutlichen dies an den gemessenen Wärmestrom- und Temperaturprofilen. Gerade im Bereich des thermohydraulischen Anlaufs ($<0,5$ m) wird der Kondensationswärmestrom signifikant unterschätzt, bei ausgebildeter Strömung jedoch plausibel abgebildet.

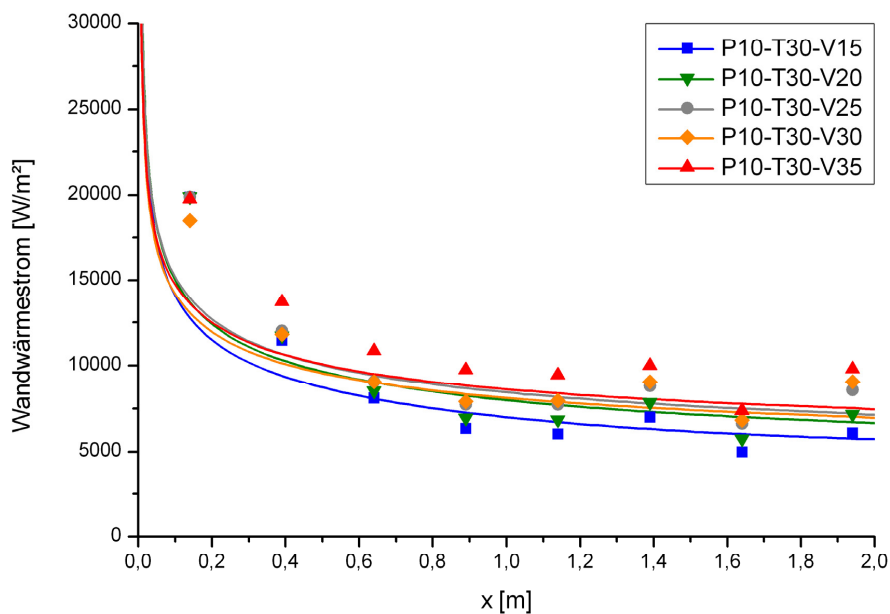


Abb. 5.24: Vergleich der berechneten und gemessenen Kondensationswärmeströme

Dieses Phänomen ist nach Ambrosini [AMB09] auf mögliche dreidimensionale Effekte im Prüfstand sowie ungleichmäßige Einströmprofile zurückzuführen. Im Rahmen von Parameterstudien konnte ein deutlicher Einfluss des Turbulenzgrads am Einströmrand nachgewiesen werden. Ein zunehmender Turbulenzgrad führt zu frühzeitigem Umschlag zwischen laminarer und turbulenter Grenzschicht, somit zu verbessertem Stofftransport und letztendlich zu lokal höheren Kondensationsraten. Dieser Effekt wird durch die Arbeiten von Kerstin et al. [KER61] zum Einfluss der Freistromturbulenz auf den Wärmeübergang an einer ebenen Platte experimentell bestätigt.

Auf Basis der vorliegenden Daten konnte die prinzipielle Eignung des implementierten Kondensationsmodells zur Abbildung von Wandkondensationsvorgängen nachgewiesen werden. Die Einflüsse der Größen Strömungsgeschwindigkeit, Gemischzusammensetzung und Wandtemperaturen werden gut wiedergegeben. Die Übertragbarkeit auf freie Konvektion ist aufgrund der direkten Implementierung in CFX, d. h. ohne Verwendung empirischer Ansätze, gegeben. Bei der Übertragung auf waagerechte Rohre – wie sie auch im Gebäudekondensator eingesetzt werden – ist jedoch zu berücksichtigen, dass der Wärmewiderstand des Kondensatfilms mitunter nicht vernachlässigt werden kann [ROS09, AMB09], da die Kondensation zum stetigen Anwachsen der Kondensatfilmdicke über den Rohrreihen führt. Für diesen Fall ist eine einphasige Betrachtung nur in globaler Sicht, d. h. auf Basis empirischer Korrelationen möglich. Andererseits verstärkt das von oben auftreffende Kondensat die Konvektion im Film, was seinen Wärmewiderstand reduziert [KAR88].

Nach Fethke [FET98] fällt das Kondensat bei den geringen am Gebäudekondensator vorliegenden Kondensationsraten periodisch in kleinen Tropfen ab. Bei dieser Strömungsform ist im Gegensatz zur kontinuierlich ablaufenden Säulen- oder Filmform nur mit einem geringen lokalen Einfluss auf den Wärmewiderstand des Kondensatfilms und damit die Kondensationsrate zu rechnen. In diesem Fall ist die Übertragbarkeit des Kondensationsmodells auf Rohrbündelanordnungen gegeben. Zusätzlich werden im Folgenden nur zwei übereinanderliegende Rohrreihen in versetzter Anordnung, also insgesamt maximal vier Kondensatorrohrreihen, betrachtet.

5.4 Fehlerdiskussion

Eine Quantifizierung des Modellfehlers durch direkten Vergleich mit den experimentellen Daten ist definitionsgemäß nicht möglich, da sich bei einer Simulation verschiedenste physikalische und numerische Fehlerquellen überlagern. Unter Anwendung sogenannter „Best Practice Guidelines“ (BPG) [ECO01, ERC00] werden daher zunächst numerische Fehlerquellen minimiert, um abschließend aus den verbleibenden Abweichungen zu experimentellen Werten einen Rückschluss auf die Modellfehler ziehen zu können.

5.4.1 Numerische Fehler

Unter Ausschluss von Programm- und Eingabefehlern können die numerischen Fehler in drei Gruppen unterteilt und gemäß der folgenden Hierarchie minimiert werden [ECO01]:

- Rundungsfehler: Unterschiede in der Lösung bei einfach- und doppelt-genauer Lösung
- Iterationsfehler: Unterschied zwischen völlig konvergierter Lösung und Lösung nach n-Iterationsschritten
- Diskretisierungsfehler: Unterschied zwischen konvergierter Lösung auf verwendetem Rechengitter und „exakter“ Lösung der Modellgleichungen auf unendlich feinem Gitter

Bei auftriebsgetriebenen Strömungen empfiehlt es sich, aufgrund möglicher lokal geringer Dichteunterschiede mit doppelter Genauigkeit zu rechnen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher generell mit doppelter Genauigkeit gerechnet, Rundungsfehler können somit für diese Betrachtung ausgeschlossen werden.

Konvergierende iterative Lösungen nähern sich asymptotisch mit dem Iterationsfortschritt ihrer exakten Lösung an. Die Genauigkeit der Lösung ist demnach nicht proportional zur Iterationszahl. Vielmehr ist nach einer zu bestimmenden Anzahl an Iterationsschritten keine signifikante Erhöhung der Genauigkeit des Ergebnisses mehr zu beobachten. Für eine effektive Nutzung der Rechenkapazität empfiehlt es sich, zu diesem Zeitpunkt die Berechnung abubrechen. Iterationsfehler, oft auch Abbruchfehler genannt, beinhalten also den verbleibenden Fehler im Vergleich zur vollständig auskonvergierten Lösung. Für ihre Minimierung werden zum einen lokale und integrale Bilanzfehler (Residuen), zum anderen der Verlauf der Zielgrößen über dem Iterationsfortschritt betrachtet. Abbildung 5.25 zeigt am Beispiel des Condensation Benchmark-run1 die Entwicklung der Bilanzfehler, sowie der

Zielgrößen integrale Kondensationsrate, Temperaturen und Wasserdampfkonzentrationen über der Iterationsschrittzahl.

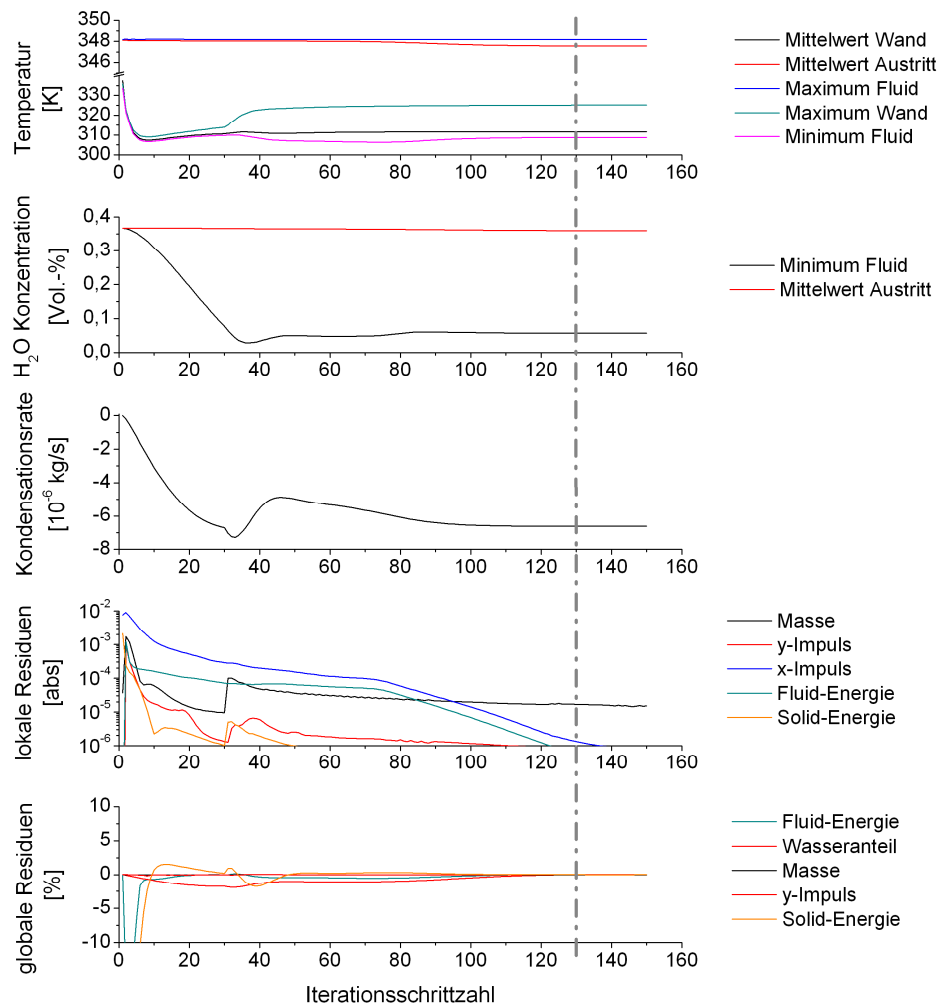


Abb. 5.25: Histogramme für ausgewählte Zielgrößen sowie globale und lokale Residuen

Es ist ersichtlich, dass der Abbruchfehler oberhalb einer Iterationszahl von 130 vernachlässigbar wird, d. h. die Zielgrößen quasi-konstante Werte annehmen und lokale Residuen um mehr als vier Größenordnungen reduziert wurden. Die minimale Iterationszahl wurde für alle Rechnungen so gewählt, dass die in Tabelle 5.5 zusammengefassten Zielgrößen und Monitorpunkte quasi-konstante Werte, im Fall der Regelabweichung sehr kleine Werte, einnehmen. Als Abbruchkriterium wurde ein maximales lokales Residuum von 10^{-4} , für die globalen Bilanzen ein maximaler relativer Bilanzfehler von $\pm 1\%$ verwendet. Die in Tabelle 5.5 angegebenen Extremwerte dienen des Weiteren einer ersten Plausibilitätsprüfung der Ergebnisse.

So darf z. B. die minimale Wasserdampfkonzentration nicht unterhalb der Sättigungsdampfkonzentration bei der vorherrschenden Wandtemperatur liegen.

Zielgröße	Reaktionsmodell	Kondensationsmodell
Temperaturen	Minimale, maximale, mittlere Katalysatortemperatur	Minimale, maximale, mittlere Wandtemperatur
	Mittlere Gasaustrittstemperatur	Minimale, maximale Gastemperatur
Konzentrationen	Mittlere H ₂ -, O ₂ -Austrittskonzentration	Mittlere H ₂ O-Austrittskonzentration
	Minimale H ₂ -, O ₂ -Konzentration	Minimale H ₂ O-Konzentration
Quellterme	H ₂ -, O ₂ -, H ₂ O-Transportgleichung	Kontinuitätsgleichung
	Energiegleichung	Energiegleichung
Regler	Integrale H ₂ -, O ₂ -Regelabweichung	Integrale H ₂ O-Regelabweichung

Tab. 5.5: Zielgrößen und Monitorpunkte

Im Allgemeinen nimmt die Genauigkeit einer Simulation mit zunehmender Gitterauflösung, d. h. kleineren Zellgrößen zu, da vor allem starke lokale Gradienten besser aufgelöst werden. Neben der reinen Knotendichte kommen aber auch den in Tabelle 5.6 angegebenen Qualitätskriterien große Bedeutung bei der Gittergenerierung zu, da sie die Stabilität des numerischen Verfahrens beeinflussen. Innerhalb von Scherschichten können die Kantenverhältnisse jedoch auch Ordnungen von 10^5 .. 10^6 annehmen [ANS07].

Qualitätskriterium	ERCOFTAC BPG [ERC00]	ECORA BPG [ECO01]	ANSYS [ANS07]
Rechtwinkligkeit	kleinster Winkel >18°		kleinster Winkel >20°
Kantenverhältnis einer Zelle	20..100 (Bulk-Strömung)	20..50 (Bulk-Strömung)	<1000 (doppelt genau)
Volumenverhältnis benachbarter Zellen		<15	<20

Tab. 5.6: Gitterqualitätskriterien

Aufgrund beschränkter Rechenkapazitäten müssen jedoch oftmals Kompromisse zwischen Genauigkeit und Rechenzeit getroffen werden. Zur Minimierung von Diskretisierungsfehlern wird eine Rechnung auf sukzessiv verfeinerten Rechengittern solange wiederholt, bis die Lösung quasi unabhängig von der räumlichen Diskre-

tisierung ist. Abbildung 5.26 verdeutlicht dieses Vorgehen anhand dreier für den Condensation Benchmark-run1 verwendeter Gitter. Für einen low-Reynolds-Ansatz sollte der wandnahe Knoten in der viskosen Unterschicht zwischen $y^+=1-4$ liegen und die Grenzschicht mit mindestens 30 Knotenpunkten aufgelöst werden [ERC00]. Dieses Kriterium ist auf dem groben Gitter nicht erfüllt, was zu einer Überschätzung des Dampftransports zur Wand und somit des Wärmeübergangs bzw. der Wandtemperaturen führt (vgl. Abb. 5.27). Die weitere Verfeinerung des mittleren Gitters demonstriert die Gitterunabhängigkeit der Lösung.

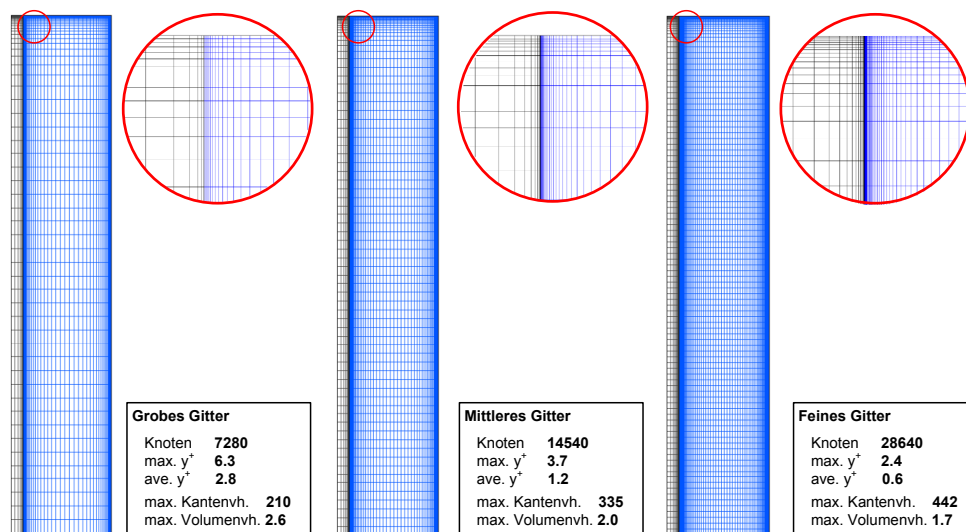


Abb. 5.26: Gitterstudie beim Condensation Benchmark-run1

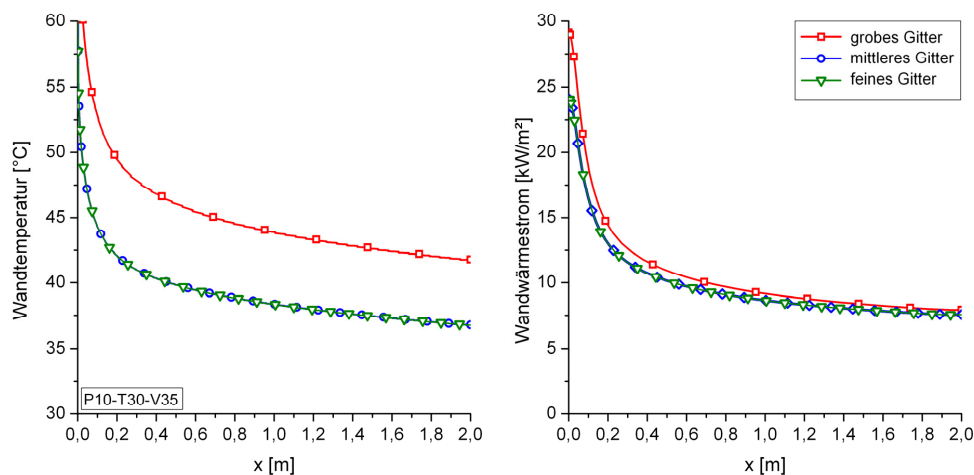


Abb. 5.27: Vergleich der Simulationsergebnisse auf drei sukzessiv verfeinerten Rechengittern

5.4.2 Modellfehler

Modellfehler werden als die Differenz zwischen der exakten Lösung des mathematischen Modells und den experimentellen Daten definiert. Basierend auf der vorangegangenen Minimierung des numerischen Fehlers kann also die verbleibende Abweichung zwischen Modell und Experiment als Modellfehler betrachtet werden [FER08]. Er wird durch die Unzulänglichkeiten des mathematischen Modells bestimmt. Obwohl die der Strömung zugrundeliegenden Navier-Stokes-Gleichungen als exaktes mathematisches Modell angesehen werden können, ist es mit der verfügbaren Rechenleistung nicht möglich, sie zu lösen. Phänomene wie Turbulenz oder Wärmestrahlung erfordern vereinfachte Schließungsmodelle. Auch führen z. B. die Vereinfachung der Geometrie, die Verwendung von Symmetrierandbedingungen oder die Approximation von Randbedingungen zu einem Fehler. Selbst bei der exakten Beschreibung durch das mathematische Modell können sich Unsicherheiten bei der Bestimmung der Stoffeigenschaften sowie der Mischungseigenschaften auswirken.

Anhand von Parametervariationen zum Einfluss der verwendeten Modellannahmen kann die Sensitivität des Modells auf die verschiedenen Modellannahmen und Vereinfachungen ermittelt werden. Für das Reaktionsmodell können zwei signifikante Unsicherheitsquellen ermittelt werden:

- Die Strömungsgeschwindigkeit wird aus den Normvolumenströmen der Massendurchflussregler bei Eintrittstemperatur ermittelt. Das Thermoelement TRC 3.25, welches die Eintrittstemperatur misst, wird jedoch über Wärmestrahlung von den Katalysatorproben aufgeheizt und misst tendenziell zu hohe Temperaturen. Zur Kompensierung dieses Effekts sind keine Erfahrungen vorhanden, es wird daher der Wert des Thermoelements verwendet, was aufgrund der somit etwas höheren Strömungsgeschwindigkeit zu einer leichten Überschätzung der Reaktionsraten führt.
- Für die Modellierung des Wärmestrahlungsaustauschs sind keine Messdaten vorhanden. Der Emissionsgrad der Oberflächen sowie die Schwarzkörpertemperaturen für den Wärmestrahlungsaustausch mit dem Ein- und Ausströmrand müssen aus den experimentellen Daten abgeschätzt werden. Dies kann zu mitunter signifikanten Unsicherheiten bei den Katalysatortemperaturen führen, beeinträchtigt die Berechnung der Reaktionsraten jedoch kaum.

Eine detaillierte experimentelle Untersuchung und Abschätzung dieser Effekte wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht vorgenommen, so dass auf die Quantifizierung der Modellfehler verzichtet wird. Die vorgenommenen Abschätzungen der Randwerte

und die gewählten Modellparameter führten jedoch im breiten Parameterfeld, der in Tabelle 4.4 angegebenen Testfälle, zu einer meist guten Übereinstimmung mit den experimentellen Daten.

Für das Kondensationsmodell lässt sich eine nennenswerte Sensitivität des Modells auf die Einströmrandbedingung, insbesondere die Definition des Turbulenzgrads, feststellen. Diese wirkt sich insbesondere im Strömungsanlauf mit einer deutlichen Unterschätzung des Stofftransports und damit der Kondensationsrate aus und konnte bis zur Fertigstellung der Arbeit von Seiten des Betreibers der Anlage (Uni Pisa) nicht genauer spezifiziert werden.

6 Kombiniertes Katalysator/Kondensator-System

6.1 Konzeptidee

Im Folgenden wird, basierend auf dem Gebäudekondensator des SWR1000, ein neues, erweitertes Kondensatorkonzept, auch zur Anwendung in DWR, vorgeschlagen: In das Kondensatorbündel werden zusätzliche, mit Katalysator beschichtete Rohre integriert. An diesen rekombiniert der Wasserstoff mit dem vorhandenen Restsauerstoff der SB-Atmosphäre zu Wasserdampf. Dies kann prinzipiell auf zwei Wegen die Effizienz des Kondensators erhöhen: zum einen wird der die Kondensation treibende Dampfgradient und damit die integrale Kondensationsrate erhöht, zum anderen wird das sehr leichte nichtkondensierbare Gas Wasserstoff abgebaut und somit der für die auf freier Konvektion basierende Durchströmung des Kondensators erforderliche Dichtegradient über dem Bündel erhöht, was gasseitig in einer höheren Durchströmung resultiert. Die freiwerdende Reaktionswärme der katalytischen Reaktion wird über den sekundärseitigen Kühlmittelstrom abgeführt, so dass sich keine gegenläufig wirkenden Auftriebskräfte einstellen.

Neben der erhöhten Kondensationsrate und Durchströmung führt aber auch allein die katalytische Reaktion gemäß Gl. 1.1 zum Druckabbau. Denn, betrachtet man die Stoffmengenbilanz, reagieren anderthalb mol Edukte zu einem mol Produkt. Aufgrund der Kombination mit einem Kondensator bewirkt die chemische Reaktion darüber hinaus sogar noch einen effektiveren Druckabbau, da das aus nichtkondensierbaren Gasen gebildete Produkt Wasserdampf anschließend zumindest teilweise auskondensiert.

Ein kombiniertes Katalysator- und Kondensator-System trägt daher im Verlauf schwerer Störfälle zu einer effizienteren Druckbegrenzung im SB bei. Im Weiteren wird ein solches Konzept im Detail diskutiert und anhand von CFD-Berechnungen werden die o. g. Vorteile demonstriert und bewertet.

6.2 Konzeptentwurf

In Anlehnung an den Gebäudekondensator im SWR 1000 werden unberippte Rohre mit einem Außendurchmesser von $d_a = 38 \text{ mm}$ und einer Wandstärke von $s = 3 \text{ mm}$ verwendet. Die kompakteste Anordnung stellt eine Dreiecksteilung dar (vgl. Abb. 6.1). Die minimale Rohrteilung ergibt sich nach DIN 28182 [VDI05] zu $t = 47 \text{ mm}$. Die Rohrlänge wird analog zum SWR1000 mit 4 m festgelegt. Zur Unterstützung des sekundärseitigen Naturumlaufs sind die Rohre mit 10° zur Horizontalen geneigt.

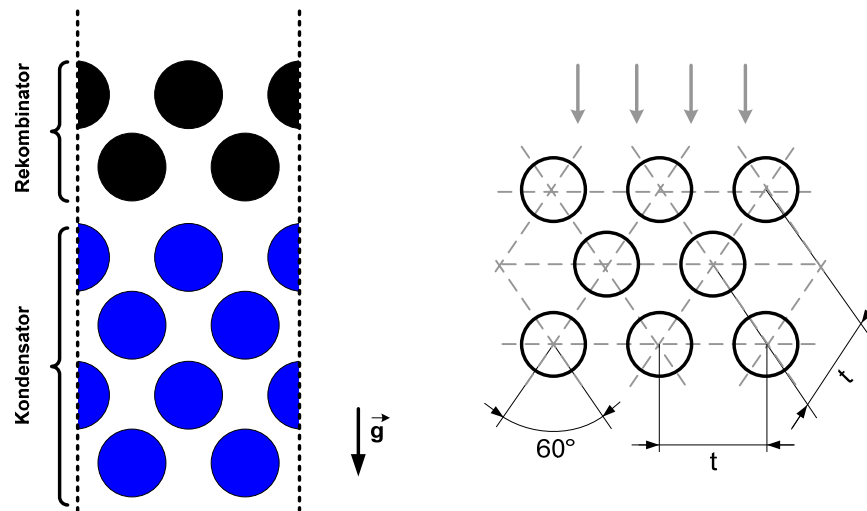


Abb. 6.1: Anordnung der Rohre im kombinierten Katalysator/Kondensator-System

Bezüglich der Anzahl der Rohrreihen sind bei der Auslegung gegenläufige Effekte zu berücksichtigen. Prinzipiell lässt sich mit einer größeren Anzahl Rohre mehr Wasserdampf kondensieren und aufgrund des größeren Dichtegradienten in Strömungsrichtung ein höherer Bündeldurchsatz erzielen. Jedoch bringt eine größere Rohrreihenanzahl einen erhöhten Druckverlust mit sich. Zudem nimmt bei Kondensation, im Gegensatz zu einem Rohrbündelwärmeübertrager ohne Phasenwechsel, der Wärmeübergangskoeffizient in Strömungsrichtung durch das Rohrbündel ab. Das an der vorangegangenen Rohrreihe gebildete Kondensat gelangt an die darunterliegende Rohrreihe und benetzt diese. Die Dicke des Kondensatfilms nimmt dabei zu, wodurch sich der Wärmeübergangskoeffizient verringert. Nach [VDI05] gilt für den mittleren Wärmeübergangskoeffizienten α_n an n übereinanderliegenden Kondensatorrohrreihen

$$\alpha_n = n^{-1/4} \alpha_1, \quad (1.3)$$

wobei α_1 der Wärmeübergangskoeffizient am obersten Rohr ist. Für den Einfluss auf den Wärmeübergangskoeffizienten ist der auftretende Kondensatmassenstrom entscheidend. Nach Fethke [FET98] ist bei den am vergleichbaren SWR1000-Gebäudekondensator auftretenden geringen Kondensatmassenströmen davon auszugehen, dass das Kondensat periodisch in kleinen Tropfen abfließt, so dass bei einer geringen Anzahl von Rohrreihen keine nennenswerte Reduktion des Wärmeübergangs auftritt. Für die vorliegende Arbeit werden für das Kondensatorbündel vier Rohrreihen in versetzter Anordnung, d. h. zwei übereinanderliegende Rohrreihen, betrachtet. Somit ist gemäß obiger Anforderungen ein effektives System

gegeben und die Übertragbarkeit der Erfahrungen aus den experimentellen Untersuchungen zum Gebäudekondensator des SWR1000 gewährleistet.

Für die Einbringung der mit Katalysatormaterial beschichteten Rohre muss gewährleistet sein, dass kein Kondensat auf die Katalysatorrohre gelangt. Hierzu werden die Katalysatorrohre oberhalb der Kondensatorrohre angeordnet. Bezüglich der Anzahl der Rekombinatorrohre sind ebenfalls gegensätzliche Effekte zu berücksichtigen. Zum einen führt eine höhere Reihenzahl zu verbesserten Umsatzraten, da neben der vergrößerten Katalysatorfläche durch die vorangegangene Rohrreihen Turbulenz induziert wird, was wiederum den Stofftransport begünstigt. Zum anderen führt diese Turbulenz aber auch zu höheren Druckverlusten. Da die chemische Reaktion aufgrund der Kühlung nur eine vernachlässigbare Dichteänderung hervorruft, stellen die Rekombinatorrohre ausschließlich einen Strömungswiderstand für die sich aufgrund der Kondensation einstellende freie Konvektion durch das Bündel dar. Im Rahmen dieser Arbeit werden zwei Rohrreihen in versetzter Anordnung für den Rekombinatorteil des Rohrbündels betrachtet.

Das sekundärseitige Design des Kondensatorbündels wird vom Gebäudekondensator des SWR1000 übernommen. Für das Rekombinatorrohrbündel ist eine zusätzliche Randbedingung zu erfüllen: Die Kühlung darf nicht zur Kondensation an den Katalysatorrohren führen. Für die Auslegung bedeutet dies, dass die Katalysatortemperatur immer höher als die Gastemperatur bei Sättigungsbedingung im vorherrschenden Druckniveau im SB liegen muss. Abbildung 6.2 verdeutlicht diese Anforderung für das gesamte Parameterfeld.

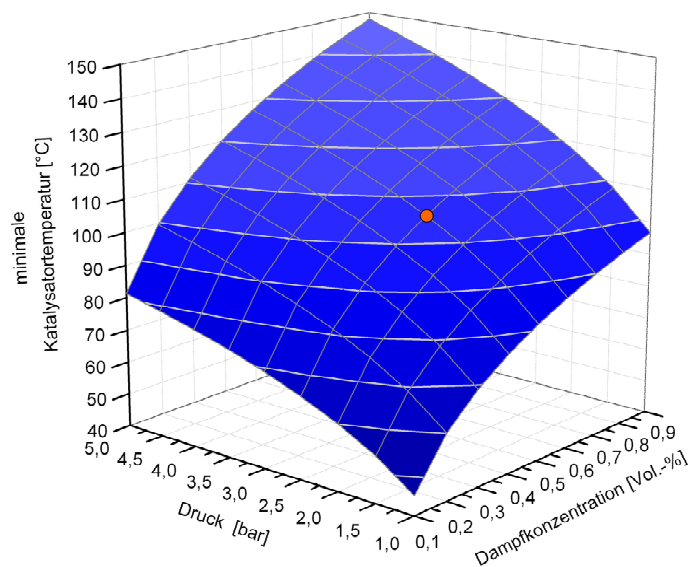


Abb. 6.2: Erforderliche minimale Katalysatortemperatur zur Vermeidung von Kondensation an den Katalysatorrohren

So ergibt sich beispielsweise für den eingezeichneten Betriebspunkt (Atmosphärendruck 2,5 bar, Wasserdampfanteil 50 Vol.-%) eine minimal erforderliche Katalysatortemperatur von 106°C um Kondensation an den Katalysatorrohren auszuschließen.

Diese Randbedingung lässt sich nicht durch Integration in den Kühlkreislauf des Kondensators erfüllen. Für die Katalysatorrohre muss daher ein separater geschlossener Kühlkreislauf vorgesehen werden. Die kalte Seite des Kreislaufs kann mittels eines Wärmetauschers bzw. Kondensators an den Kondensatorkreislauf gekoppelt werden. Über den Siedepunkt des Kühlmediums und das Beimischen von nichtkondensierbaren Gasen lässt sich bei den vorherrschenden geringen Wärmestromdichten sekundärseitig eine zweiphasige Strömung mit geringen Dampfgehalten einstellen, so dass im Katalysator ein quasi konstantes Temperaturniveau vorliegt [VDI05]. Die Forderung ist daher prinzipiell erfüllbar, so dass im Weiteren die sekundäre Seite nicht näher betrachtet wird.

6.3 Numerische Betrachtung

6.3.1 Modellaufbau

Die Simulation von freier Konvektion durch das Bündel ist mit einem offenen Rechengebiet nicht möglich, da in diesem Fall sowohl der dynamische Druck am Einströmrand als auch der Massenstrom Teil der Lösung sind. Die Vorgabe von statischen Drücken am Ein- und Ausströmrand bietet daher eine sehr unsichere Kombination von Randbedingungen, wobei die Lösung sehr sensitiv auf die Startwerte ist [ANS07]. Der zu betrachtende Ausschnitt des kombinierten Katalysator/Kondensator-Bündels wird daher in einem sehr großen geschlossenen Rechengebiet platziert. Anstelle von Ein- und Ausströmrandbedingungen wird der Bündelausschnitt mittels Interfaces mit der relativ grob diskretisierten „Umgebung“ verbunden. Diese ist derart dimensioniert, dass über den gesamten Simulationszeitraum konstante Werte von Temperatur, Zusammensetzung sowie ein gleichförmiges Geschwindigkeitsprofil für die Anströmung des Bündels vorliegen. Da der ANSYS CFX-Solver bei stationären Berechnungen die zeitliche Dichteänderung nur als unterrelaxierenden Faktor berücksichtigt [ANS07], ein geschlossenes System bei einer stationären Rechnung also nicht konservativ ist, wird die komplette Transiente bis zum Erreichen einer quasistationären Lösung instationär berechnet. Beide Bedingungen und die für das Reaktions- und Kondensationsmodell erforderliche feine Diskretisierung der Grenzschicht resultieren in hohen Rechenzeiten, so dass für die folgende Parameterstudie ausschließlich zweidimensionale Berechnungen durchgeführt werden. Die in die dritte Raumrichtung variable sekundärseitige Temperatur des Kondensatorteils

wird dabei als Parameter berücksichtigt. Abbildung 6.3 zeigt das gewählte Rechengebiet sowie die Randbedingungen und die örtliche Diskretisierung des Bündelausschnitts.

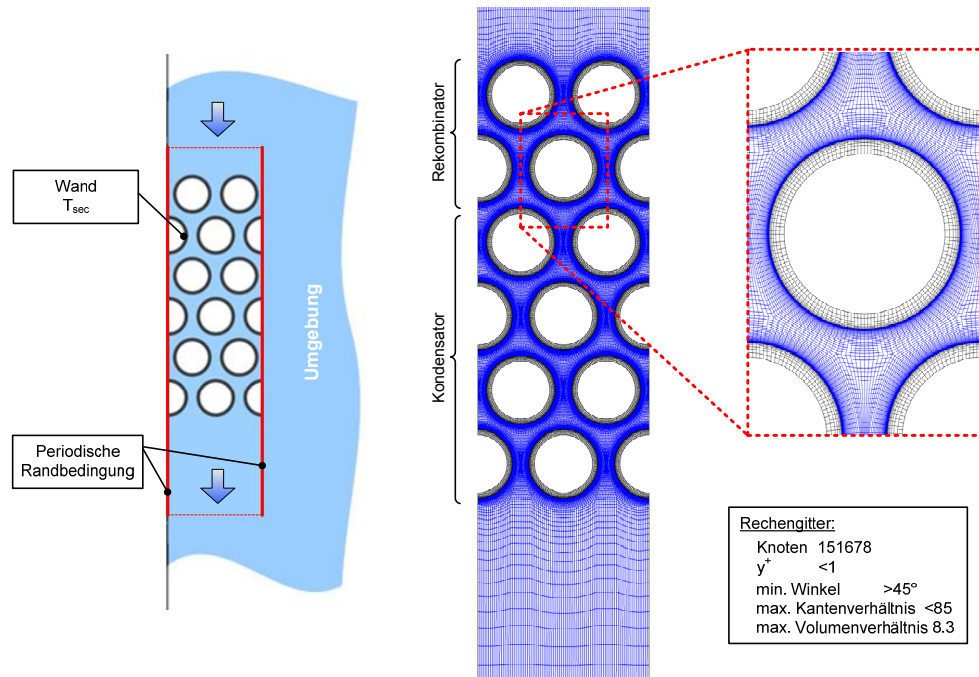


Abb. 6.3: 2D-Rechenmodell für die Parameterstudien zu kombinierten Katalysator/Kondensator-Bündeln

Zur Bewertung der Erweiterung mit Katalysatorrohren wird eine Rechnung mit identischen Randbedingungen jedoch ohne die beiden Katalysatorrohrreihen herangezogen.

6.3.2 Parameterstudie

Gasseitig liegen für das zu untersuchende System drei Freiheitsgrade vor: Druck, Temperatur und Zusammensetzung der SB-Atmosphäre. Im Rahmen einer ersten Parameterstudie werden diese variiert. Die minimale sekundärseitige Temperatur für die Kühlung des Rekombinatorteils ergibt sich aus der Forderung, dass sich auf der Katalysatoroberfläche kein Kondensat bilden darf (vgl. Abb. 6.2). Für die Kühlung des Kondensatorteils wird diese Temperatur konservativ basierend auf den Ergebnissen von Fethke [FET98] abgeschätzt. Der sekundärseitige Wärmeübergang spielt nur eine untergeordnete Rolle, da sowohl bei stofftransportkontrollierter

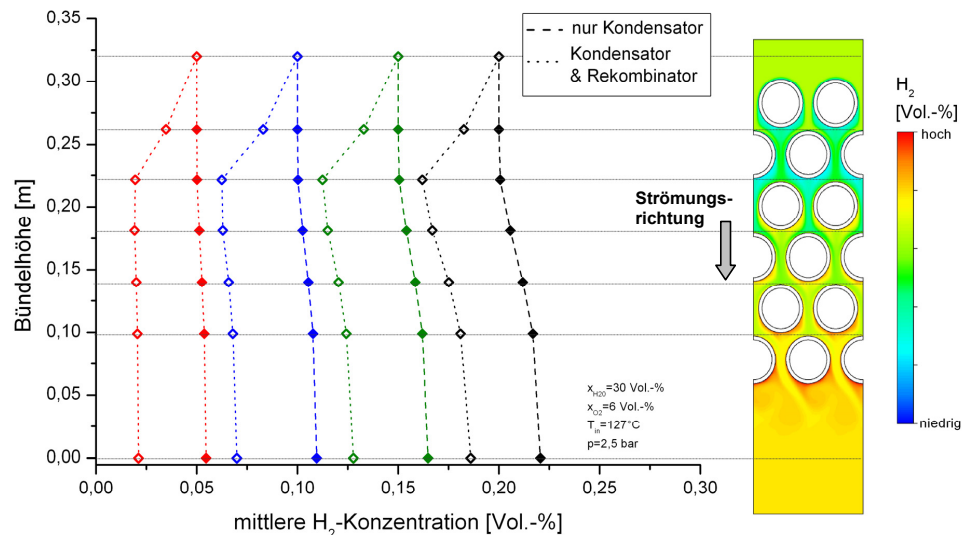
Reaktionskinetik wie auch bei Kondensation in Anwesenheit von Inertgasen der größte Wärmetransportwiderstand in der Gasphase liegt.

Nach de la Rosa [ROS09] ist für einen schweren Störfall mit einem Druckniveau zwischen 2,5-4,5 bar im SB zu rechnen. Die Atmosphäre besteht hierbei zu 30-60 Gew.-% aus nichtkondensierbaren Gasen. Für eine erste Parameterstudie werden der SB-Druck sowie die Dampf- und H_2 -Konzentration variiert. Die N_2 -Konzentration wird hierbei so angepasst, dass innerhalb einer Testreihe immer das gleiche Verhältnis von Wasserdampf zu nichtkondensierbaren Gasen vorliegt. Die Atmosphärentemperatur T_{atm} wird so gewählt, dass eine relative Feuchte von 80% vorliegt. Für die Untersuchung des kombinierten Katalysator/Kondensator-Bündels ergeben sich somit die in Tabelle 6.1 zusammengefassten Randbedingungen.

Druck [bar]	T_{atm} [°C]	x_{H_2} [Vol.-%]	x_{O_2} [Vol.-%]	x_{H_2O} [Vol.-%]	Rekombinator T_{sek} [°C]	Kondensator T_{sek} [°C]
2,5	127	5 / 10 / 15 / 20	6	30	100	80
2,5	127	5 / 10 / 15 / 20	6	50	110	80
5,0	145	5 / 10 / 15 / 20	6	30	110	80
5,0	145	5 / 10 / 15 / 20	6	50	130	80
2,5	127	15	2 / 4 / 6 / 8 / 10	50	110	80

Tab. 6.1: Testmatrix für die gaseitigen Parameterstudien zum kombinierten Katalysator / Kondensatorbündel

Der Einfluss des Rekombinatorrohrbündels wird im Folgenden exemplarisch anhand der ersten Testreihe diskutiert. Abbildung 6.4 vergleicht die über den Bündelquerschnitt gemittelten H_2 -Konzentrationen für das reine Kondensatorbündel (Referenz) sowie das kombinierte System. Anhand der Referenzkurven wird die Anreicherung des Wasserstoffs in Strömungsrichtung aufgrund der Teilkondensation des Wasserdampfs deutlich. Dieser Effekt nimmt mit zunehmender Kondensationsrate, d. h. höheren Wasserdampfkonzentrationen, zu. Durch die Erweiterung mit Rekombinatorrohren wird ein Teil des Wasserstoffs mit dem vorhandenen Sauerstoff zu Wasserdampf rekombiniert. Die Teilkondensation des Wasserdampfs führt zwar ebenfalls zu einer geringen Anreicherung des Wasserstoffs, jedoch liegt die mittlere Wasserstoffkonzentration am Austritt des Bündels im Gegensatz zur Referenz unterhalb der Eintrittskonzentration. Dies wirkt sich positiv auf den Dichtegradienten über dem Bündel und somit auch den Durchsatz durch das Bündel aus.

Abb. 6.4: H_2 Konzentrationsprofile über dem Katalysator/Kondensator-Bündel

Betrachtet man den in Abbildung 6.5 dargestellten Vergleich der über den Bündelquerschnitt gemittelten Wasserdampf-Konzentrationsprofile, so lässt sich der Einfluss der Rekombinatorrohre deutlich erkennen. Der durch die Rekombination entstandene Wasserdampf führt zu einer bis um 20% relativ erhöhten Dampfkonzentration. Oberhalb von 5 Vol.-% H_2 nimmt die Reaktionsrate aufgrund der geringen O_2 -Konzentration nicht weiter zu, so dass diese Profile in etwa deckungsgleich verlaufen. Der höhere Dampfgradient zwischen Wand und Strömung resultiert gemäß Gl. 5.32 in einer höheren Kondensationsrate, was sich wiederum positiv auf den Dichtegradient über dem Bündel auswirkt und eine höhere Durchströmung nach sich zieht. Der Theorie nach wird der Dichtegradient maßgeblich durch die Kondensationsrate, also die Dichteänderungsrate, und die vorliegende Wasserstoffkonzentration und damit das Verhältnis der Dichten von Wasserdampf zu nicht-kondensierbaren Gasen beeinflusst. In Abbildung 6.6 sind die über den Querschnitt gemittelten Dichteverläufe für das kombinierte System (K&R) der Referenz (nur K) gegenübergestellt. Es ist erkennbar, dass vor allem der Abbau von Wasserstoff in den ersten beiden Rohrreihen den größten Anteil an der Erhöhung des Dichtegradienten über dem Bündel beiträgt. Die beim reinen Kondensatorbündel ist über der letzten Rohrreihe eine systematisch mit steigender Wasserstoffkonzentration stärkere Reduktion der Dichte festzustellen. Dieser Effekt ist physikalisch nicht zu erklären und auf die Mittelwertbildung (zwischen den Rohrreihen bzw. in der freien Strömung) gemäß Gl. 5.29 zurückzuführen.

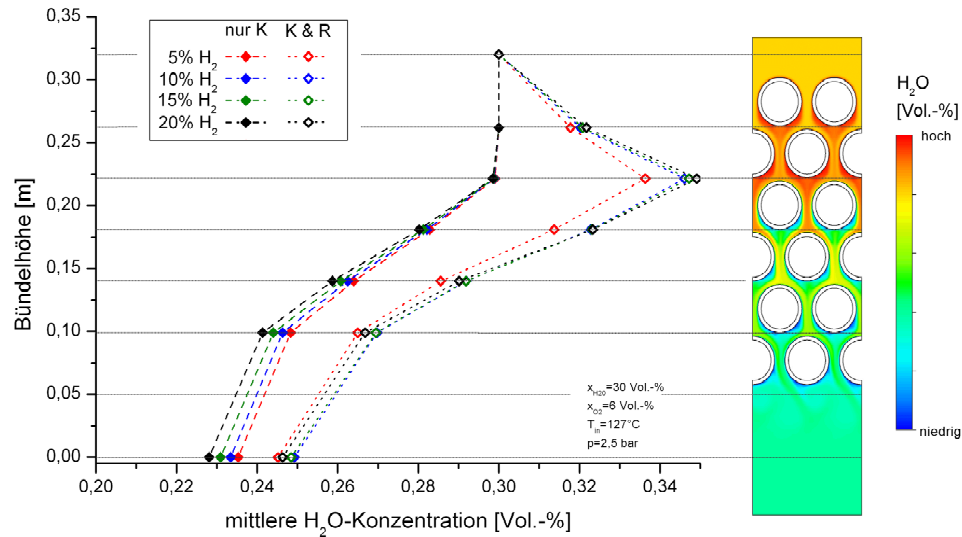
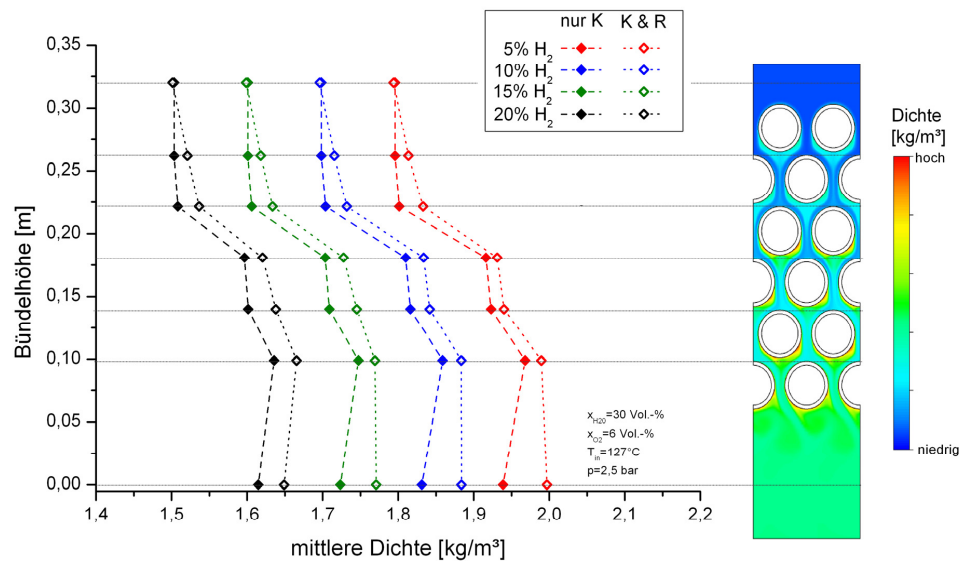
Abb. 6.5: H₂O-Konzentrationsprofile über dem Katalysator/Kondensator-Bündel

Abb. 6.6: Dichteprofile über dem Katalysator/Kondensator-Bündel

Dem erhöhten Dichtegradienten stehen jedoch auch höhere Druckverluste durch zwei zusätzliche Rohrreihen gegenüber. In Abbildung 6.7 sind daher die resultierenden Bündeldurchsätze (bestimmt am Eintritt) dargestellt. Es ist erkennbar, dass der Druckverlust den positiven Einfluss des höheren Dichtegradienten ausgleicht oder sogar übersteigt, was bezogen auf den Durchsatz in quasi gleichen oder sogar geringeren Massenströmen durch das Bündel resultiert. Vergleicht man die Gradienten

über der H_2 -Konzentration, so lässt sich feststellen, dass der negative Einfluss des Wasserstoffs auf den Bündeldurchsatz mit zunehmender Kondensationsrate und damit Wasserdampfkonzentration zunimmt.

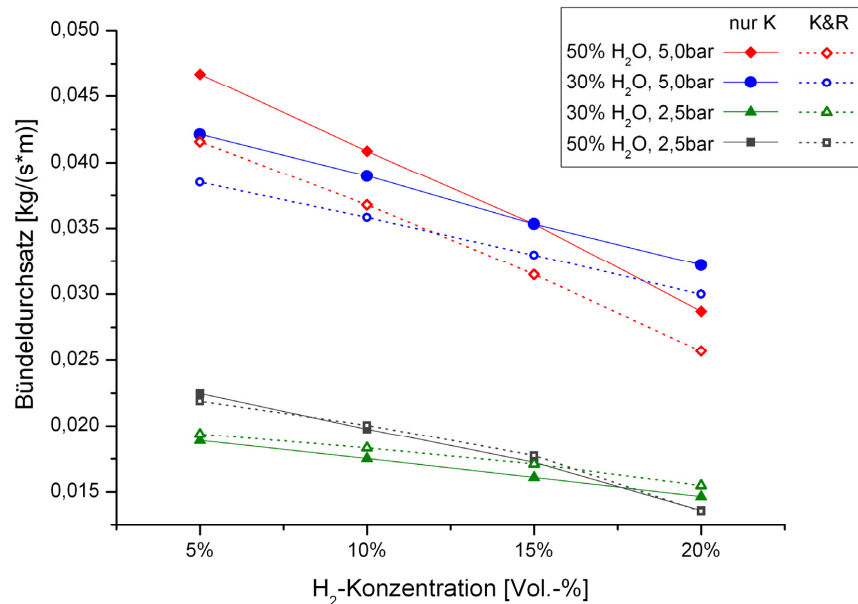


Abb. 6.7: Vergleich der Durchsätze für ein normales und kombiniertes Bündel

Da Wandkondensation in Anwesenheit nichtkondensierbarer Gase ein stofftransportlimitiertes Problem darstellt, wird die integrale Kondensationsrate durch zwei Faktoren bestimmt: zum einen vom Konzentrationsgradienten über der Grenzschicht, zum anderen von der Dicke der Grenzschicht und damit der Reynolds-Zahl. Letztere hängt maßgeblich vom Bündeldurchsatz ab. Da bei der Parametervariation innerhalb einer Testreihe das Verhältnis zwischen den Konzentrationen von Wasserdampf und nichtkondensierbaren Gasen beibehalten wird und die Reaktionsrate aufgrund der limitierten O_2 -Konzentration ebenfalls quasi konstant ist, wirkt sich also nur der Bündeldurchsatz auf die integrale Kondensationsrate aus. Dies ist in Abbildung 6.8 vergleichend für das Referenzbündel und das kombinierte Bündel dargestellt. Für alle Betriebspunkte zeigt sich beim kombinierten Bündel eine höhere integrale Kondensationsrate, wobei teilweise auch eine niedrigere Durchströmung zu beobachten ist. Zusammengefasst bedeutet das, dass – bezogen auf die Kondensationsrate und damit den Druckabbau – der größte Nutzen eines kombinierten Bündels in der Erhöhung der Wasserdampfkonzentration liegt, dass also der größere Dichtegradient den zusätzlichen Druckverlust zumindest teilweise kompensiert.

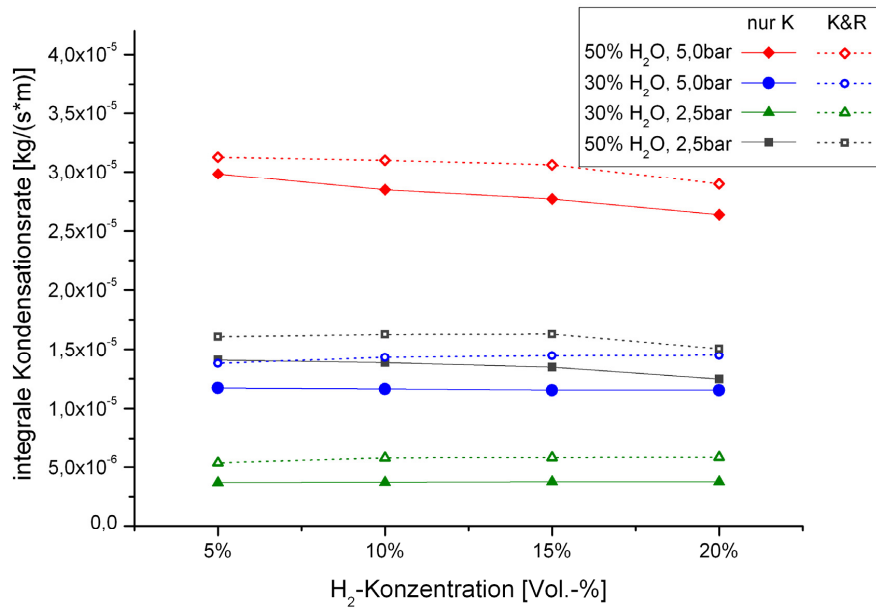


Abb. 6.8: Vergleich der integralen Kondensationsraten für ein normales und kombiniertes Bündel

Abbildung 6.9 stellt den Einfluss des O₂-Anteils im Gasgemisch für ein reines Kondensatorbündel (nur K) und ein kombiniertes Bündel (K&R) gegenüber.

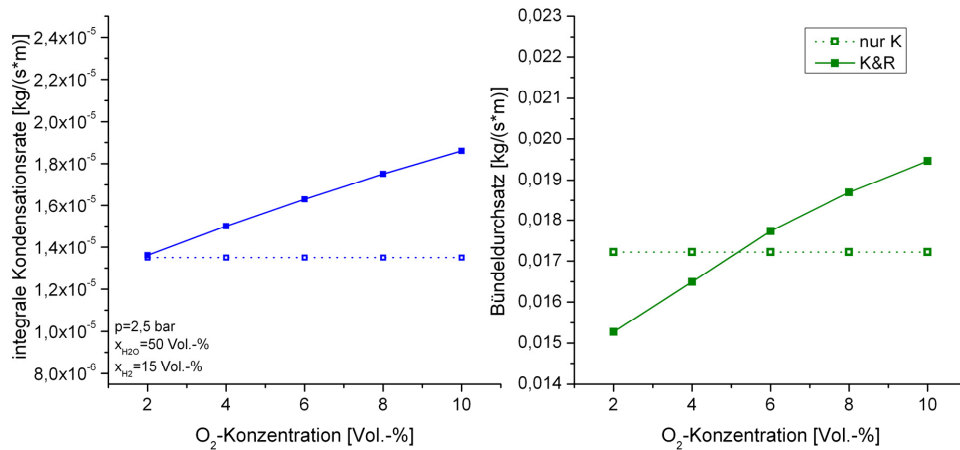


Abb. 6.9: Einfluss des Sauerstoffanteils im Gasgemisch auf integrale Kondensationsraten und Bündeldurchsatz für ein normales und kombiniertes Bündel

Beim reinen Kondensatorbündel hat – bei konstanter H₂O Konzentration – die O₂-Konzentration keinen Einfluss auf die Kondensationsrate, da sich die Dichte des Sauerstoffs kaum auf die des Gasgemischs auswirkt. In den zuvor beschriebenen Testreihen ist O₂ im Unterschuss, d. h. die O₂-Konzentration bedingt die Reaktionsrate. Liegt eine höhere O₂-Konzentration vor, so kann mehr H₂ rekombiniert werden.

Dies führt zu einer weiteren Verbesserung der zuvor beschriebenen Effekte, d. h. die Effektivität eines kombinierten Bündels steigt mit zunehmender O_2 -Konzentration.

Sekundärseitig liegen für das System nur zwei Freiheitsgrade vor: die sekundärseitigen Temperaturen von Kondensator und Katalysatorrohren. Zur Untersuchung des Einflusses der sekundärseitigen Temperaturen werden zwei Testreihen mit den in Tabelle 6.2 zusammengefassten Randbedingungen berechnet. Die Untergrenze der Katalysatortemperatur wird hierbei durch die Bedingung gegeben, dass es am Katalysator nicht zur Kondensation kommen darf. Die Kondensatortemperatur darf – um die Modellannahmen zu gewährleisten – nicht mehr als 70°C unter der Atmosphärentemperatur liegen, da ansonsten Volumen Kondensation in der Grenzschicht auftritt.

Druck [bar]	T_{in} [$^\circ\text{C}$]	x_{H_2} [Vol.-%]	x_{O_2} [Vol.-%]	$x_{\text{H}_2\text{O}}$ [Vol.-%]	Rekombinator T_{sek} [$^\circ\text{C}$]	Kondensator T_{sek} [$^\circ\text{C}$]
2,5	127	10	6	50	110	60 / 70 / 80 / 90
2,5	127	10	6	50	100 / 120 / 140 / 160	80

Tab. 6.2: Testmatrix für die sekundärseitigen Parameterstudien zum kombinierten Katalysator/Kondensator-Bündel

In Abbildung 6.10 ist der Einfluss der sekundärseitigen Kondensatortemperatur auf die integrale Kondensationsrate sowie den Bündeldurchsatz für ein normales und kombiniertes Bündel gegenübergestellt.

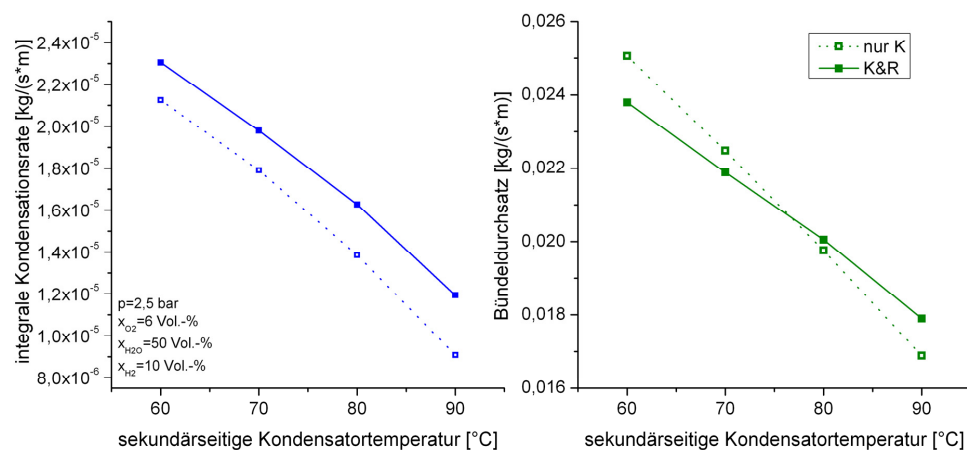


Abb. 6.10: Einfluss der sekundärseitigen Kondensatortemperatur auf integrale Kondensationsraten und Bündeldurchsatz für ein normales und kombiniertes Bündel

Der Sättigungsdampfdruck nimmt gemäß Gl. 5.34 mit zunehmender Temperatur exponentiell zu und die integrale Kondensationsrate somit ab. Dies führt zu einem geringeren Dichtegradienten über dem Bündel und damit auch zu niedrigeren Bündeldurchsätzen. Gerade bei höheren Kondensatortemperaturen – und somit geringeren H_2O -Konzentrationsgradienten über der Grenzschicht – wirkt sich somit die zusätzliche H_2O -Bildung aufgrund der Rekombination positiv auf die Kondensationsrate aus. Die bei hohen Temperaturen ($>80^\circ\text{C}$) gegenüber dem reinen Kondensatorbündel festzustellende leicht höhere Durchströmung ist auf die erhöhte Kondensationsrate und den somit stärkeren Dichtegradient zurückzuführen.

Im Gegensatz zur Kondensationsrate ist die Reaktionsrate aufgrund der stofftransportkontrollierten Kinetik quasi unabhängig von der sekundärseitigen Temperatur (vgl. Kap 5.2.2). In der zweiten Testreihe konnte somit kein signifikanter Einfluss auf Kondensationsrate oder Bündeldurchsatz festgestellt werden. Liegt die Katalysatortemperatur jedoch oberhalb der Gastemperatur, so führt dies zur Aufheizung des Gasgemischs und somit zur geringfügigen Reduzierung des Bündeldurchsatzes.

6.3.3 Bewertung der Ergebnisse

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Basis zur Untersuchung eines kombinierten Rekombinator/Kondensator-Systems geschaffen und anhand einer Parameterstudie gezeigt, dass sich die Erweiterung eines Kondensatorrohrbündels mit Katalysatorrohren in einem weiten Parameterbereich positiv auf die Effektivität des Kondensators auswirkt. Dies kann zur effektiveren Druckbegrenzung im Fall eines schweren Störfalls beitragen, was ggf. eine spätere gefilterte Druckentlastung des SB ermöglicht und somit eine geringere Freisetzung flüchtiger Spaltprodukte nach sich zieht.

Die zusätzlichen Katalysatorrohre stellen jedoch auch einen Strömungswiderstand dar und können somit im ungünstigsten Fall, d. h. falls nicht ausreichend Sauerstoff oder Wasserstoff vorhanden sind, den Bündeldurchsatz und damit auch die Bündelleistung reduzieren. Dieser Fall kann sowohl zu Beginn eines schweren Störfalls, also vor Überhitzung des Kerns, als auch in der langfristigen Phase des Störfalls eintreten. Zu Beginn des Störfalls wird der überwiegende Teil der Nachzerfallsleistung von den SB-Strukturen und vorhandenen Wasserreservoirern aufgenommen. Im Verlauf des Störfalls fällt die Nachzerfallsleistung exponentiell ab, so dass der GK im SWR1000 auf die Nachzerfallsleistung ca. 24h nach Eintritt des Störfalls ausgelegt wird [HIC00]. Zu diesem Auslegungszeitpunkt sind ausreichend Wasserstoff und Sauerstoff vorhanden, so dass dann der positive Einfluss der Katalysatorelemente zu tragen kommt. Die Optimierung der Bündelanordnung hin-

sichtlich des Druckverlusts sollte jedoch im Vordergrund weiterführender Arbeiten stehen.

Aus der Parameterstudie ist ebenfalls ersichtlich, dass die Kondensatorleistung stark von den vorliegenden Atmosphärenbedingungen im SB, d. h. Druck, Temperatur, Zusammensetzung etc., abhängt. Die Bewertung der Erweiterung des GK mit Katalysatorrohren hinsichtlich ihres Potentials zur effektiveren Druckbegrenzung sollte daher anhand eines relevanten Störfallszenarios durchgeführt werden. Dies ist mit den für diese Arbeit erstellten detaillierten CFD-Modellen zurzeit aufgrund beschränkter Rechenkapazität nicht möglich, so dass zu diesem Zweck die Ableitung von Parametermodellen für die Betrachtung mit LP-Containment-Codes vorgeschlagen wird. Hierbei sollte insbesondere untersucht werden inwiefern sich eine gefilterte Druckentlastung durch die Erweiterung des Gebäudekondensators mit Rekombinatorrohren verzögern oder sogar ausschließen lässt.

Anhand der Parameterstudie zu den sekundärseitigen Temperaturen kann kein nennenswerter Einfluss der Katalysatortemperaturen auf die Bündelleistung festgestellt werden. Für die Auslegung des Kühlsystems bedeutet dies, dass die sekundärseitige Temperatur (vgl. Abb. 6.2) auf den maximal denkbaren Wert (und damit auch das Kühlmedium) festgelegt werden kann, wobei zu hohe Temperaturen vermieden werden sollten um durch den zusätzlichen, wenn auch geringen Wärmeeintrag in das Gas, einen negativen Einfluss auf den Dichtegradient zu vermeiden.

7 Zusammenfassung und Ausblick

In modernen Reaktorkonzepten der Generationen III und III+ werden passive Sicherheitssysteme eingesetzt, um die Integrität der physikalischen Barrieren gegen die Freisetzung von Spaltprodukten zu gewährleisten. Der SB stellt hierbei die letzte Barriere dar. Eine frühzeitige gefilterte Druckentlastung aufgrund eines unzulässigen Druckaufbaus muss daher ausgeschlossen, bzw. zumindest verzögert werden. Für diesen Zweck sind in modernen SB-Konzepten Wärmetauscher vorgesehen, die den im Störfall freigesetzten Dampf kondensieren und somit Druck abbauen.

Im Rahmen dieser Arbeit wird das im SWR1000 vorgesehene Konzept des Gebäudekondensators näher betrachtet. Dieser besteht aus geneigten Rohren, an deren Außenseite der Wasserdampf kondensiert. Die bei der Kondensation freiwerdende Wärme wird an das Wasser in den Rohren übertragen. Das Wasser erwärmt sich und strömt in das oberhalb des SB angeordnete Absetzbecken, so dass kaltes Wasser nachfließt. Durch Teilkondensation des spezifisch leichteren Wasserdampfs und die Abkühlung des Gasgemischs steigt dessen Dichte, und es etabliert sich ein nach unten gerichteter Naturzug. Kann im Verlauf des Störfalls die Kühlung des Reaktorkerns nicht sichergestellt werden, kommt es aufgrund der exothermen Oxidation metallischer Kerneinbauten, vor allem der Zirkaloy-Hüllrohre der Brennstäbe, zu einer signifikanten Produktion und Freisetzung von Wasserstoff in den SB. Vorangegangene experimentelle Untersuchungen sowohl in Einzel-Effekt Versuchen an der NOKO-Anlage, als auch in Integralexperimenten an der PANDA-Anlage haben gezeigt, dass sich dieser Wasserstoff negativ auf die Leistung des Gebäudekondensators auswirkt, da dieses zusätzliche, sehr leichte Gas zum einen das Verhältnis zwischen Wasserdampf und nichtkondensierbaren Gasen reduziert und zum anderen den für die Durchströmung des GK nötigen Dichtegradienten reduziert. Da der GK im Störfall die einzige Wärmesenke im SB darstellt, bestimmt er den langfristigen Druckaufbau. Seiner zuverlässigen Funktion, auch in Anwesenheit von Wasserstoff, kommt daher zentrale Bedeutung zu.

Im Rahmen dieser Arbeit wird, basierend auf dem Gebäudekondensator des SWR1000, ein neues, erweitertes Kondensatorkonzept – auch zur Anwendung in modernen DWR Konzepten – vorgeschlagen: In das Kondensatorbündel werden zusätzliche, mit Katalysator beschichtete Rohre integriert. An diesen rekombiniert der Wasserstoff mit dem vorhandenen Restsauerstoff der SB-Atmosphäre zu Wasserdampf. Hierdurch wird zum einen der für die Kondensation treibende Dampfgradient und damit die integrale Kondensationsrate erhöht, zum anderen wird das sehr leichte, nichtkondensierbare Gas Wasserstoff abgebaut und somit der für die auf freier Konvektion basierende Durchströmung erforderliche Dichtegradient

über dem Bündel erhöht. Neben höheren Kondensationsraten bietet die Erweiterung den Vorteil, dass nichtkondensierbare Gase umgewandelt und durch Kondensation aus der Gasphase entfernt werden können, was zu einer weiteren Druckreduktion im SB führt. Die freiwerdende Reaktionswärme der katalytischen Reaktion wird über den sekundärseitigen Kühlmittelstrom abgeführt, so dass sich aufgrund der exothermen Reaktion keine gegenläufig wirkenden Auftriebskräfte einstellen.

Zur Untersuchung und Bewertung dieser Konzeptidee werden zunächst detaillierte CFD-Modelle zur Beschreibung der katalytischen Oberflächenreaktion und Wandkondensation abgeleitet. In vorangegangenen Arbeiten konnte gezeigt werden, dass die katalytische Oberflächenreaktion in einem weiten Temperaturbereich mittels eines Stofftransportansatzes beschrieben werden kann. Diese Modellannahme wird zur Beschreibung der Oberflächenreaktion in das kommerzielle CFD-Programmpaket ANSYS CFX 11 implementiert und anhand der umfangreichen Daten zur Reaktion an katalytisch beschichteten Blechen erfolgreich validiert. Zur Überprüfung der Übertragbarkeit auf zylindrische Katalysatorelemente werden Versuche an der kleinskaligen Versuchsanlage REKO-3 durchgeführt und die Übertragbarkeit des Modells bestätigt. Ebenfalls kann gezeigt werden, dass die Annahme einer stofftransportlimitierten Reaktionskinetik bei Katalysatortemperaturen oberhalb von 100°C gerechtfertigt ist.

Zur Beschreibung von Wandkondensation in Anwesenheit von nichtkondensierbaren Gasen wird ein vergleichbarer Transportansatz gewählt. Die Überprüfung des Modells erfolgte im Rahmen des Condensation Benchmark des EU-Netzwerks SARNET in zwei Schritten. Anhand eines Code-to-Code-Vergleichs und eines Vergleichs mit ingenieurtechnischen Korrelationen konnte im ersten Schritt die konsistente Implementierung nachgewiesen werden. Im zweiten Schritt erfolgte die erfolgreiche Validierung des Modells anhand experimenteller Daten der CONAN-Anlage an der Universität Pisa (Italien).

Die Untersuchung eines kombinierten Katalysator/Kondensator-Systems erfolgt mittels einer Parameterstudie an einem Ausschnitt aus dem Rohrbündel. Anhand der Gegenüberstellung eines reinen Kondensatorbündels sowie eines Kondensatorbündels mit zwei zusätzlichen Katalysatorrohrreihen kann die Konzeptidee vom Prinzip her bestätigt werden. Es zeigt sich, dass der aufgrund der zusätzlichen Rohre höhere Strömungswiderstand durch den aufgrund des Wasserstoffabbaus größeren Dichtegradienten über dem Bündel kompensiert wird, die Erweiterung teilweise jedoch eine geringere Durchströmung bedingt. Durch die Rekombination zu Wasserdampf wird aber der für die Kondensation treibende Dampfgradient erhöht, was integral über das gesamte Parameterfeld in einer höheren Kondensationsrate

resultiert. Ein kombiniertes Katalysator- und Kondensatorsystem trägt daher im Verlauf schwerer Störfälle zu einer effizienteren Druckbegrenzung im SB bei.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden ausschließlich die gasseitigen Phänomene an einem kombinierten System betrachtet. Die sekundärseitige Abfuhr der Reaktions- und Kondensationswärme wurde nur mittels Randbedingungen berücksichtigt. Zur Vermeidung von Kondensation an den Katalysatorrohren muss zu deren Kühlung ein separater Kühlkreislauf vorgesehen werden, der die Katalysatorrohre z. B. aufgrund des Siedepunkts des Kühlmittels nicht unter die Sättigungsdampftemperatur kühlt. Dies erscheint theoretisch möglich, sollte jedoch in einer aufbauenden Arbeit auch experimentell abgesichert werden.

Die in dieser Arbeit erstellten detaillierten Modelle sollten zur weiteren Optimierung der Bündelanordnung hinsichtlich des Strömungswiderstands verwendet werden. Die atmosphärischen Bedingungen, d. h. Druck, Temperatur, Feuchte und Gaszusammensetzung können jedoch zwischen den verschiedenen denkbaren Störfallszenarien sowie auch im Verlauf eines Störfalls sowohl zeitlich als auch örtlich stark variieren. Da diese Bedingungen die Leistung eines Gebäudekondensators stark beeinflussen, ist die Quantifizierung der Sicherheitsreserven eines kombinierten Systems für repräsentative Störfallszenarien aufgrund beschränkter Rechenkapazität in absehbarer Zeit mittels detaillierter CFD-Analysen nicht möglich. Daher sollten in aufbauenden Arbeiten aus den CFD-Berechnungen Parametermodelle abgeleitet und zur Störfallanalyse in einen LP Containment-Code, wie z. B. COCOSYS, implementiert werden. Hierbei sollte insbesondere untersucht werden, inwiefern sich eine gefilterte Druckentlastung durch die Erweiterung des Gebäudekondensators mit Rekombinatorrohren verzögern oder sogar ausschließen lässt.

8 Literaturverzeichnis

- [ACK68] Ackermann D.: *Beitrag zur Berechnung des Wärmeübergangs bei Kondensation in Anwesenheit von Inertgas*, Wärme- und Stoffübergang, Bd. 1, S. 246-250, 1968
- [AMB06] Ambrosini W. et al.: *CFD Models for Predicting Condensation in Nuclear Reactor Containments within the SARNET Network of Excellence*, SARNET-CONT-P02, DIMNP 001(2006), 2006
- [AMB07] Ambrosini W. et al.: *Results of the SARNET Condensation Benchmark No. 0*, DIMNP006(2007), University of Pisa, 2007
- [AMB08] Ambrosini W. et al.: *Comparison and Analysis of the Condensation Benchmark Results*, Proceedings of the 3rd European Review Meeting on Severe Accident Research (ERMSAR-2008), Nessebar, Bulgaria, 23-25 September 2008
- [AMB09] Ambrosini W. et al.: *Experiments and Modelling Techniques for Heat and Mass Transfer in Light Water Reactors*, Science and Technology of Nuclear Installations, Article ID 738480, Volume 2009, 2009
- [ANS07] ANSYS CFX Version 11: *Solver Theory*, Ansys Inc., 2007
- [BAC03] Bachellerie E. et al.: *Generic Approach for Designing and Implementing a Passive Autocatalytic Recombiner PAR-System in nuclear power plant containments*, Nuclear Engineering and Design 221 (2003) 151-165
- [BAE04] Baerns M.: *Basic Principles in Applied Catalysis*, Springer Verlag, 2004
- [BAE06] Baehr H.D., Stephan K.: *Wärme- und Stoffübertragung*, 5. Auflage, Springer Verlag, 2006
- [BEH99] Behrendt F.: *Experimentelle und numerische Beschreibung katalytischer Zünd- und Verbrennungsprozesse*, Habilitationsschrift, Universität Essen, 1999
- [BER00] Bermejo J.M. et al.: *EC-sponsored research activities on innovative passive safety systems*, Nuclear Engineering and Design 201, S. 25-40, 2000
- [BIR02] Bird R.B., Stewart W.E., Lightfoot E.N.: *Transport Phenomena*, 2. Auflage, John Wiley Sons, Inc, 2002

- [BOE06] Böhm J.: *Modellierung der Prozesse in katalytischen Rekombinatoren*, Dissertation, RWTH Aachen, 2006
- [BRO91] Brouwers H.J.H.: *A film model for heat and mass transfer with fog formation*, Chem. Eng. Sci. 47(12), S. 3023-3036, 1991
- [BUC08] Bucci M. et al.: *Prediction of transpiration effects on heat and mass transfer by different turbulence models*, Nuclear Engineering and Design 238 (2008), S. 958-974, 2008
- [DEU07] Deutschmann O., et al.: *DETchem User Manual*, Version 2.1, Institute for Chemical Technology and Polymer Chemistry, University of Karlsruhe, Germany, 2007
- [DRE99] Dreier, J., Aubert, C., Huggenberger, M., Strassberger, H.J., Meseth, J., Yadigaroglu, G., *The PANDA Tests for SWR1000 Passive Containment Cooling System*, 7th Int. Conf. on Nuclear Engineering (ICONE-7316), Tokyo, Japan, 1999.
- [DRI05] Drinovac P.: *Experimentelle Untersuchungen zu katalytischen Wasserstoffrekombinatoren für Leichtwasserreaktoren*, Dissertation, RWTH Aachen, 2005
- [DUR06] Durst F.: *Grundlagen der Strömungsmechanik*, Springer Verlag, 2006
- [ECO01] Menter F. et al.: *CFD Best Practice Guidelines for CFD Code Validation for Reactor-Safety Applications*, EC Contract. No. FIKS-CT-2001-00154, 2001
- [ECP02] EC Project PARSOAR: *State-of-the-Art Report on Passive Autocatalytic Recombiner – Handbook Guide for Implementing Catalytic Recombiners*; Contract FIKS-CT1999-2002
- [ERC00] Casey M., Wintergerste T.: *Best Practise Guidelines*, ERCOFTAC, 2000
- [FER08] Ferziger J.H., Peric M.: *Numerische Strömungsmechanik*, Springer Verlag, 2008
- [FET98] Fethke, M.: *Experimentelle und analytische Untersuchungen zur Effektivität des Gebäudekondensators im SWR1000*, Berichte des Forschungszentrums Jülich, Jül-3617, 1998
- [FIN84] Finken R., et al.: *PRIAMUS – Ein Rechenprogramm zur Bestimmung thermophysikalischer Stoffwerte von Gasgemischen aus O₂, N₂, CO, CO₂, He, H₂O, H₂ und CH₄*, Berichte des Kernforschungsanlage Jülich, Nr. 1916, 1984

- [FIS03] Fischer K. et al.: *Hydrogen Removal from LWR Containments by catalytic-coated thermal insulation elements (ThinCAT)*, Nuclear Engineering and Design 221, S.137-149, 2003
- [FRÖ06] Fröhlich, J.: *Large-Eddy-Simulation turbulenter Strömungen*, Vieweg+Teubner Verlag, 2006
- [GRS08] GRS Zwischenbericht: *Untersuchungen zur weiteren Verbesserung der Methoden zur sicherheitstechnischen Bewertung der katalytischen Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff in Sicherheitsbehältern von Kernkraftwerken*, Förderkennzeichen 1501308, Berichtszeitraum 2008-1
- [HER98] Herranz L.E., Anderson M.H., Corradini M.L.: *Diffusion Layer Model for Steam Condensation within the AP600 Containment*. Nuclear Engineering and Design, vol. 183, S. 133-150., 1998.
- [HIC00] Hicken, E.F: et al.: European BWR-R&D Cluster for Innovative Passive Safety Systems, Final Report, 2000
- [IAE01] International Atomic Energy Agency: *Mitigation of hydrogen hazards in water cooled power reactors*, IAEA-TECDOC-1196, Austria, 2001
- [IAE96] International Atomic Energy Agency (IAEA): *Defense in Depth in Nuclear Safety*, (International Nuclear Safety Advisory Group) INSAG-10 – Safety Series No. 75 (1996)
- [INC02] Incropera F.P., deWitt D.P.: *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*, 5th Edition, Wiley, 2002
- [KAR88] Karl St.: *Wärmeübergang beim Kondensieren und Sieden*, Springer Verlag, 1988
- [KAR96] Karl J.: *Untersuchungen des Wärmeübergangs bei der Partial-kondensation mittels linearer Ramanspektroskopie*, Dissertation TU München, 1996
- [KAW07] Kawakubo M. et al.: *Condensation Heat Transfer on a vertical tube under non-condensable Condition*, 15th International Conference on Nuclear Engineering, Nagoya, Japan, April 22-26, 2007
- [KER61] Kerstin J. et al.: *Influence of Turbulence on the Transfer of Heat from Plates with and without a Pressure Gradient*, International Journal for Heat and Mass Transfer, Vol 3, p. 133-154, Pergamon Press, 1961

- [KOL04] Kolev N.I.: *External Cooling – The SWR1000 Severe Accident Management Strategy*, 12th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE-12), Arlington, USA, 2004
- [LEC09] Lecheler S.: *Numerische Strömungsberechnung*, Vieweg+Teubner Verlag, 2009
- [LEY08] Leyer S. et al.: *SWR 1000: Integral and Full-Scale Testing of the Passive Safety Systems*, Proceedings Jahrestagung Kerntechnik, Hamburg, 2008
- [LID05] Lide, D.R. et al.: *CRC Handbook of Thermophysical and Thermochemical Data*, Boca Raton, 2005
- [MEN01] Menter F., Vieser W., Esch T.: *Heat transfer predictions using advanced two-equation turbulence models*, CFX Validation Report CFX-VAL10/1002, AEA Technology, 2001
- [PET00] Peterson, P.F.: Diffusion Layer Modelling for Condensation with Multicomponent Noncondensable Gases, Journal of Heat Transfer, Vol 122, S. 216-220, 2000
- [POL01] Poling, B.E. et. al.: *The Properties of Gases and Liquids*, 5th Edition, McGraw-Hill, 2001
- [REI04] Reinecke, E.-A. et al.: *Studies on innovative hydrogen recombiners as safety devices in the containment of light water reactors*, Nuclear Engineering and Design 230 (2004) S. 49-59
- [REI08] Reinecke E.-A. et al.: *Review of LP&CFD recombiner modelling and experiments: applicability to reactor simulations and open issues*, Proceedings 3rd European Review Meeting on Severe Accident Research (ERMSAR-2008), Nesseber, Bulgarien, 23-25. September 2008
- [ROS09] De la Rosa J.C., et al.: *Review on Condensation on the Containment Structures*, Progress in Nuclear Energy 51 (2009) 32-66, 2009
- [ROS53] Rossie K.: *Die Diffusion von Wasserdampf in Luft bei Temperaturen bis 300°C*, Forschung auf dem Gebiet des Ingenieurwesens, Band 19, Heft 2, VDI Verlag, 1953

- [RSK98] Reaktorsicherheitskommission: *Maßnahmen zur Risikominderung bei Freisetzung von Wasserstoff in den Sicherheitsbehälter von bestehenden Kernkraftwerken mit Druckwasserreaktor nach auslegungsüberschreitenden Ereignissen*, Bundesanzeiger, 13. Februar 1998
- [RSK05] Empfehlung der Reaktorsicherheitskommission: *Gestaffeltes Sicherheitskonzept*, 386. Sitzung, 08.09.2005
- [RUN02] Rung T. et al.: *Numerische Methoden in der Thermo- und Fluidodynamik*, Skript zur Vorlesung, Technische Universität Berlin, 2002
- [SCL84] Schlünder E.U.: *Einführung in die Stoffübertragung*, Thieme Verlag, 1984
- [SCL97] Schlichting, H., Gersten, K.: *Grenzschicht Theorie*, 9. Auflage, Springer Verlag, 1997
- [SCO60] Scott, D.S., Cox, K.E.: *Temperature dependence of the binary diffusion coefficient of gases*. Can .J .Chem .Eng. 38 (1960) 201
- [SCW05] Schwinges, B. et al.: *Kompendium zur Wasserstoffproblematik und Wirksamkeit eines Systems autokatalytischer Rekombinatoren*, GRS-V-SR2468-1/2005, 2005
- [SCW09] Schwarz U.: *Modellierung des Betriebsverhaltens katalytischer Rekombinatoren*, Dissertation, RWTH Aachen, 2009
- [STO08] Stosic Z. et al.: *Boiling Water Reactor with innovative safety concept: The generation III+ SWR-1000*, Nuclear Engineering and Design 238, S. 1863-1901, 2008
- [SWR98] Fa. Siemens: *SWR1000 – Ein Fortschrittlicher Siedewasserreaktor mittlerer Leistung mit passiven Sicherheitsmerkmalen*, Siemens-Bereich Energieerzeugung, Okt. 2008
- [TRA05] Tragsdorf I.M.: *Entwicklung und Untersuchung von Katalysatorelementen für innovative Wasserstoff-Rekombinatoren*, Schriften des Forschungszentrums Jülich (Reihe Energietechnik), Band 36, 2005
- [VAR04] Vargaftik, N.B. et al.: *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 84th Edition, 2003-2004
- [VER07] Versteeg H.K., Malalasekera M.: *An Introduction to Computational Fluid Dynamics – The Finite Volume Method*, 2nd edition, Pearson Verlag, 2007

- [VDI05] Verein Deutscher Ingenieure (VDI): *Wärmeatlas*, 10. Auflage, 2006
- [WAG98] Wagner W., Kruse A.: *The Industrial Standard IAPWS-IF97: Properties of Water and Steam*, Springer Verlag Berlin, 1998
- [WAR01] Warnke E.P., et al.: *Cooling elements for passive heat removal*, Nuclear Engineering and Design 207, S. 33-40, 2001
- [WES09] Westinghouse: *AP1000 – Simple, Safe, Innovative*, http://www.westinghousenuclear.com/docs/AP1000_brochure.pdf, 2009
- [WIC04] Wichers, V.A., Huggenberger, M.: *Testing and Enhanced Modelling of Passive Evolutionary Systems Technology for Containment Cooling – TEMPEST*, Final Synthesis Report, EVOL-TEMPEST-D16, November 2004
- [WIL85] Williams F.A.: *Combustion Theory*, Second Edition, Addison-Wesley Publishing Company, 1985

Anhang

A1 Stoffeigenschaften

Die in den Erhaltungsgleichungen verwendeten Stoffeigenschaften werden aus den temperaturabhängigen und falls erforderlich, auch druckabhängig beschriebenen Eigenschaften der einzelnen Spezies gemittelt.

A1.1 Thermodynamische Eigenschaften

Dichte:

Die Komponenten werden als ideale Gase, ihre Mischung als ideale Mischung modelliert. Die Dichte wird über das ideale Gasgesetz beschrieben:

$$\rho = \frac{P}{RT \cdot \sum_n \frac{Y_n}{M_n}} \quad (\text{A.1})$$

Mit Druck P [Pa], R als allgemeine Gaskonstante, T lokale Temperatur. Y_i und M_i sind der Gewichtsanteil bzw. die Molmasse der i Komponenten:

	H ₂	O ₂	N ₂	H ₂ O
M [g/mol]	2,016	31,99	28,01	18,02

Spezifische Wärmekapazität:

Die spezifische Wärmekapazität der Mischung wird durch Mittelung über die Gewichtsanteile einzelnen Kapazitäten der Komponenten gebildet

$$c_p = \sum_n Y_n \cdot c_{p,n} \quad (\text{A.2})$$

Die Wärmekapazität der Einzelkomponenten wird temperaturabhängig mittels der NASA-Polynome [ANS07] beschrieben:

$$\frac{c_{p,n}}{R} = a_1 + a_2 T + a_3 T^2 + a_4 T^3 + a_5 T^4 \quad (\text{A.3})$$

Die Koeffizienten für die verschiedenen Spezies sind in Tabelle A.1 aufgeführt.

	a_1 [-]	a_2 [K ⁻¹]	a_3 [K ⁻²]	a_4 [K ⁻³]	a_5 [K ⁻⁴]	a_6 [K]	a_7 [J]
H ₂	3,298124	8,249442E-4	-8,143015E-7	-9,475434E-11	4,134872E-13	-1,012521E+3	-3,294094
O ₂	3,697578	6,135197E-4	-1,258842E-7	1,775281E-11	-1,136435E-15	-1,233930E+3	3,189166
N ₂	3,298677	1,408240E-3	-3,963222E-6	5,641515E-9	-2,444855E-12	-1,020900E+3	3,950372
H ₂ O	3,386842	3,474982E-3	-6,354696E-6	6,968581E-9	-2,506588E-12	-2,506588E-12	2,590233

Tab. A.1: Koeffizienten der NASA Polynome (Gültigkeitsbereich 300...1000 K) [ANS08]

Latente Wärme der Kondensation :

Zur temperaturabhängigen Beschreibung der latenten Wärmefreisetzung bei der Kondensation wurde der folgende Polynomansatz an die IAPWS Daten [WAG94] angepasst:

$$\Delta h_{lat} = 1.4430 \cdot 10^{-5} \cdot T^3 - 0.0127 \cdot T^2 + 6.0967 \cdot T - 3512.85 \quad [kJ / kg] \quad (A.4)$$

(Gültigkeitsbereich: 273.15 K..423.15 K)

Reaktionswärmefreisetzung bei der Rekombination von H₂ und O₂

Die Wärmefreisetzung bei der Reaktion berechnet sich aus der Differenz der Enthalpien des Produkts und der Edukte.

$$\Delta h_R(T) = \sum_n \nu_n h_n(T) \quad (A.5)$$

Hierbei ist ν_n der stöchiometrische Koeffizient der Spezies n . Unter Verwendung der NASA-Polynome lassen sich die Enthalpien der einzelnen Spezies beschreiben zu:

$$\frac{h_n}{RT} = a_1 + a_2 \frac{T}{2} + a_3 \frac{T^2}{3} + a_4 \frac{T^3}{4} + a_5 \frac{T^4}{5} + a_6 \quad (A.6)$$

Sättigungsdampfdruck von Wasser:

Der Sättigungsdampfdruck wird mittels einer Antoine Gleichung [POL01] berechnet:

$$p_{H_2O,s}(T) = 133.28 [Pa] \cdot e^{\left(18.3036 - \frac{3816.44 [K]}{T - 46.13 [K]}\right)} \quad (A.7)$$

A1.2 Transporteigenschaften

Wärmeleitfähigkeit

Zur Ermittlung der Wärmeleitfähigkeit einer Mischung wird die Mischungsformel von Wassiljewa [VDI05] angewendet:

$$\lambda = \sum_n \frac{X_n \cdot \lambda_n}{\sum_m X_m \cdot A_{nm}} \quad (\text{A.8})$$

Hierbei wird A_{nm} gemäß der Formel von Mason and Saxena [VDI05] berechnet zu:

$$A_{nm} = \frac{\left[1 + \left(\frac{\mu_n}{\mu_m} \right)^{1/2} \cdot \left(\frac{M_n}{M_m} \right)^{1/4} \right]^2}{\left[8 \cdot \left(1 + \frac{M_n}{M_m} \right) \right]^{1/2}} \quad (\text{A.9})$$

CFX bevorzugt die Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit der Einzelkomponenten über einen angepassten Sutherland Ansatz:

$$\lambda(T) = \lambda(T_0) \cdot \frac{T_0 + C}{T + C} \cdot \left(\frac{T}{T_0} \right)^n \quad (\text{A.10})$$

Die Sutherland-Konstante C und der Exponent n wurden auf die Daten aus [VDI05] gefittet. Tabelle A.2 zeigt die jeweiligen Werte für die verwendeten Stoffe:

	$T_{ref} [K]$	$\lambda_0 [W/mK]$	$C [K]$	$n [-]$
H ₂	298,15	0,18125	10	1,70
O ₂	298,15	0,02762	2	1,77
N ₂	298,15	0,02603	60	1,62
H ₂ O	298,15	0,0181	1	2,37
Luft	298,15	0,02506	70	1,70

Tab. A.2: Koeffizienten zur Wärmeleitfähigkeit (Gültigkeitsbereich 298...1000 K)

Dynamische Viskosität:

Die dynamische Viskosität einer Mischung wird mittels der Mischungsformel von Wissiljewa [VDI05] berechnet

$$\mu = \sum_n \frac{X_n \cdot \mu_n}{\sum_m X_m \cdot A_{nm}} \quad (\text{A.11})$$

hierbei wird A_{nm} gemäß der Formel von Mason and Saxena [VDI05] berechnet zu:

$$A_{nm} = \frac{\left[1 + \left(\frac{\mu_n}{\mu_m} \right)^{1/2} \cdot \left(\frac{M_n}{M_m} \right)^{1/4} \right]^2}{\left[8 \cdot \left(1 + \frac{M_n}{M_m} \right) \right]^{1/2}} \quad (\text{A.12})$$

Die dynamische Viskosität der Komponenten wird temperaturabhängig mittels einer angepassten Sutherland Formel bestimmt:

$$\mu(T) = \mu(T_0) \cdot \frac{T_0 + C}{T + C} \cdot \left(\frac{T}{T_0} \right)^n \quad (\text{A.13})$$

Die Sutherland-Konstante C und der Exponent n wurden auf die Daten aus [VDI05] gefittet. Tabelle A.3 zeigt die jeweiligen Werte für die verwendeten Stoffe:

	$T_{ref} [K]$	$\eta_0 [kg/ms]$	$C [K]$	$n [-]$
H ₂	298,15	8,9718E-6	10	1,65
O ₂	298,15	2,0726E-5	125	1,50
N ₂	298,15	1,8793E-5	75	1,50
H ₂ O	298,15	9,1884E-6	300	1,80
Luft	298,15	1,7027E-5	70	1,66

Tab. A.3: Koeffizienten zur dynamischen Viskosität (Gültigkeitsbereich 298...1000 K)

Diffusionskoeffizienten:

Zur Berechnung von binären Diffusionskoeffizienten in equimolaren Mischungen existieren in der Literatur verschiedene Ansätze die die experimentellen Werte im Allgemeinen mit einer Genauigkeit von 5-10% beschreiben. Teilweise sind jedoch auch Fehler von mehr als 20% möglich [POL01]. Da der Diffusionskoeffizient sich direkt auf die berechneten Reaktions- bzw. Kondensationsraten auswirkt wurden für

den im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Druck- und Temperaturbereich die Ansätze von Fuller, Schettler und Giddings [VDI05], Chapman und Enskog [FIN84], Gilliland [FIN84] sowie Weissman und Mason [FIN84] experimentellen Daten [ROS53, LID05, VAR04, SCO60] gegenübergestellt. Abbildung A1 zeigt beispielhaft experimentelle sowie nach den verschiedenen Verfahren berechnete Werte für den binären Diffusionskoeffizienten von H_2/N_2 in Abhängigkeit von der Gemischtemperatur.

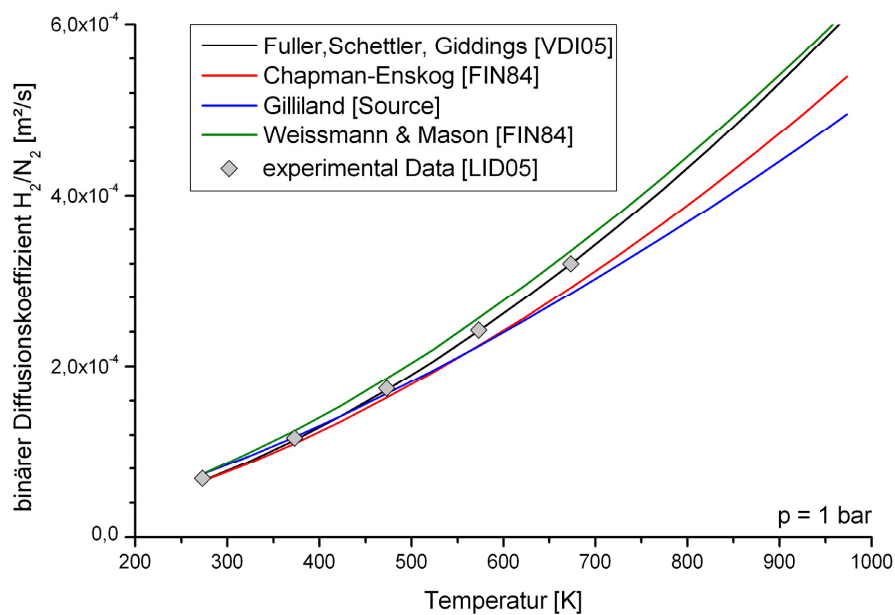


Abb. A1: Binärer Diffusionskoeffizient von H_2/N_2

Es zeigt sich dass die von Fuller, Schettler und Giddings vorgeschlagene Methode im untersuchten Temperaturbereich von 0°C bis 700°C und $1..10$ bar Druck die beste Übereinstimmung (ca. 4% [VDI05]) bringt:

$$D_{nm} = \frac{10^{-3} \cdot T^{1.75} \cdot \sqrt{\frac{M_n + M_m}{M_n \cdot M_m}} \cdot 1.013}{p \cdot \left[(v_n)^{\frac{1}{3}} + (v_m)^{\frac{1}{3}} \right]^2} \quad (\text{A.14})$$

Die hierbei verwendeten Werte der Diffusionsvolumina v sind:

	H ₂	O ₂	N ₂	H ₂ O
v	2,016	31,99	28,01	18,02

Der gemittelte Diffusionskoeffizient D_n der Spezies n in einer Gasmischung berechnet sich nach der Beziehung [VDI05]

$$D_n = \frac{1 - X_n}{\sum_{m \neq n} \frac{X_m}{D_{nm}}} \quad (\text{A.15})$$

Temperatur vorgegeben, am Ausströmrand herrscht ein relativer Gegendruck von 0 Pa.

Abbildung A3 vergleicht beispielhaft die gemessenen und errechneten Temperaturprofile an 1/3 und 2/3 Rohrlänge für verschiedene Kühlmitteldurchsätze. Aufgrund der guten Kühlung vor allem der Anströmseite ist im Gegensatz zum ungekühlten Fall am Staupunkt die niedrigste Katalysatortemperatur festzustellen. Gerade bei geringen Kühlmitteldurchsätzen ist eine signifikante Aufheizspanne des Kühlmittels messbar. Man erkennt, dass die Katalysatortemperaturen und damit auch die lokalen Reaktionsraten bei einer niedrigen Kühlleistung von 2 l/h ($T_{\text{kat}} < 80^\circ\text{C}$) relativ gut wiedergegeben werden, jedoch mit steigender Kühlleistung vom Modell zunehmend überschätzt werden. Diese systematische Überschätzung in allen Testfällen lässt sich damit erklären, dass es aufgrund der Kühlung möglicherweise lokal zur Limitierung der Reaktionskinetik durch signifikante Verlangsamung der Porendiffusion oder sogar der Oberflächenreaktion kommt. Diese Teilaspekte werden vom Modell nicht berücksichtigt. Abbildung A4 verdeutlicht dies anhand gemessener und errechneter Wasserstoffaustrittskonzentrationen.

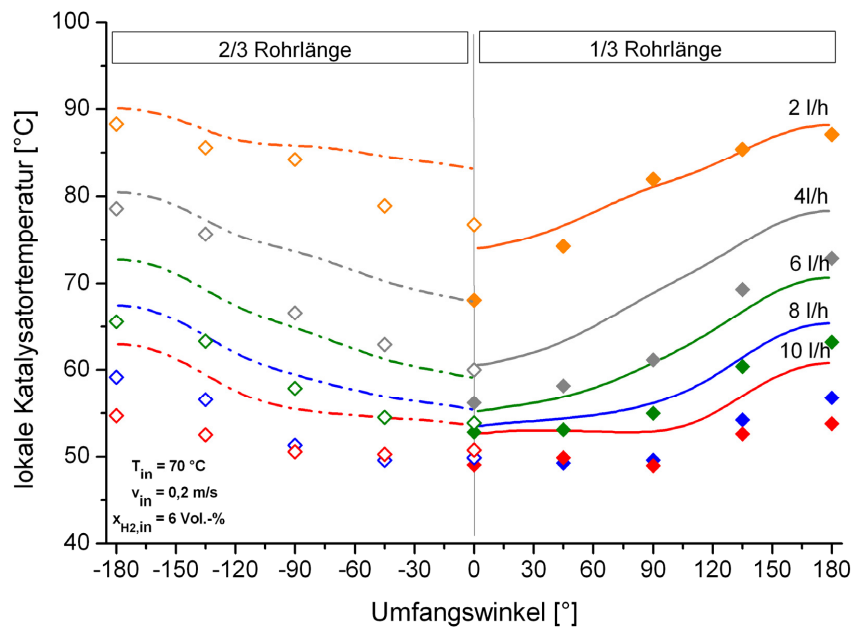


Abb. A3: Einfluss der Kühlung: Temperaturprofile

Es ist ersichtlich dass das Modell (durchgezogene Linie) quasi eine konstante Reaktionsrate, und damit auch Wasserstoffaustrittskonzentration, berechnet während im Experiment (gepunktete Linie) die integrale Reaktionsrate mit zunehmender Kühlleistung sinkt, d. h. die Austrittskonzentration steigt. Der Einfluss der Kühlung

sinkt mit zunehmender Strömungsgeschwindigkeit da bei steigenden Reynoldszahlen die Grenzschichtdicke und damit auch der Stofftransportwiderstand abnehmen. So ist bei den Messreihen bei 0,8 m/s Strömungsgeschwindigkeit und einer Wasserstoffkonzentration oberhalb von 4 Vol.-% global betrachtet kein signifikanter Einfluss der Kühlung auf die Reaktionskinetik mehr festzustellen.

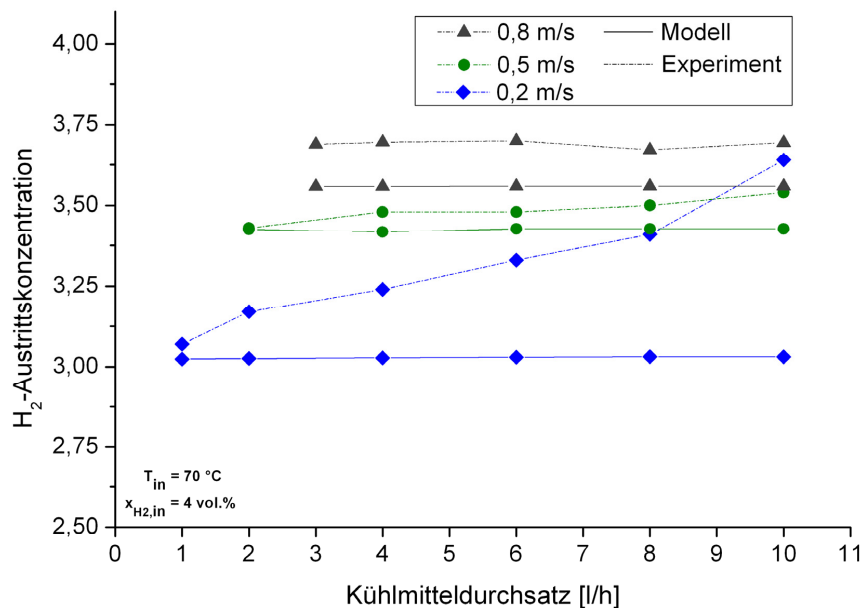


Abb. A4: Einfluss der Kühlung: Austrittskonzentrationen

Bei der Betrachtung eines kombinierten Rekombinator/Kondensator-Systems müssen zur Vermeidung von Wandkondensation an den Katalysatorelementen Temperaturen oberhalb von 100°C vorliegen (vgl. Kap. 6.2). Die an dieser Stelle vorgestellten Ergebnisse bestätigen den verwindenden Einfluss der Kühlung auf die globale Reaktionskinetik. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Berechnungen zum kombinierten Rekombinator/Kondensator-System bedeutet dies, dass die Annahme einer diffusionskontrollierten Reaktionskinetik für diesen Anwendungsfall gerechtfertigt ist.

Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Energieforschung – Sicherheitsforschung und Reaktortechnik (IEF-6) des Forschungszentrums Jülich. An dieser Stelle möchte ich mich recht herzlich bei allen bedanken, die mich während meiner Promotionszeit bei meiner Arbeit unterstützt haben.

Mein besonderer Dank gilt meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. rer. nat. Hans-Josef Allelein für seine ständige Diskussionsbereitschaft für die außergewöhnlich gute und intensive Zusammenarbeit während der Korrekturphase und nicht zuletzt für die Übernahme des Referats.

Herrn Prof. Dr.-Ing. Kurt Kugeler danke ich recht herzlich für die Übernahme des Koreferats, für die äußerst hilfreichen fachlichen Ratschläge sowie für die sehr lehrreichen Fachgespräche während der Anfertigung der Dissertation, aber auch bereits während meines Studiums.

Im Besonderen danke ich Herrn Dr.-Ing. Ernst-Arndt Reinecke, der mit seiner Betreuung und seinem immer währenden Engagement einen großen Anteil am Zustandekommen dieser Arbeit hat.

Allen meinen Kollegen bin ich für ihre Hilfsbereitschaft und für das angenehme Arbeitsklima am Institut sehr dankbar. Besonders hervorheben möchte ich Herrn Dipl.-Ing. Ulrich Schwarz für die Unterstützung und fruchtbaren Diskussionen bei der Durchführung der Messreihen. Meinem Kollegen Herrn Dipl.-Ing. Wilfried Jahn danke ich herzlichst für die Unterstützung bei der Einarbeitung in ANSYS CFX sowie bei der Durchführung der Simulationen. Insbesondere danke ich auch Frau Astrid Kuhr für ihre unermüdliche Hilfe bei allen IT Problemen.

Herrn Dr.-Ing. Jürgen Dornseiffer wie auch Herrn Dipl.-Ing. Joachim Borchardt danke ich für Bereitstellung des Katalysators und ihre wertvollen Hinweise zur Durchführung der Versuchsreihen.

Meiner Freundin Katrin Ulland danke ich für ihre moralische Unterstützung und ihre Geduld, vor allem während der Niederschrift dieser Arbeit.

Meinen Eltern, Ursula und Wieland Kelm, gebührt, für ihre ausdauernde und vielseitige Unterstützung während meines gesamten Studiums sowie der sich anschließenden Promotionszeit, mein allergrößter Dank.

1. **Einsatz von multispektralen Satellitenbilddaten in der Wasserhaushalts- und Stoffstrommodellierung – dargestellt am Beispiel des Rureinzugsgebietes**
von C. Montzka (2008), XX, 238 Seiten
ISBN: 978-3-89336-508-1
2. **Ozone Production in the Atmosphere Simulation Chamber SAPHIR**
by C. A. Richter (2008), XIV, 147 pages
ISBN: 978-3-89336-513-5
3. **Entwicklung neuer Schutz- und Kontaktierungsschichten für Hochtemperatur-Brennstoffzellen**
von T. Kiefer (2008), 138 Seiten
ISBN: 978-3-89336-514-2
4. **Optimierung der Reflektivität keramischer Wärmedämmschichten aus Yttrium-teilstabilisiertem Zirkoniumdioxid für den Einsatz auf metallischen Komponenten in Gasturbinen**
von A. Stuke (2008), X, 201 Seiten
ISBN: 978-3-89336-515-9
5. **Lichtstreuende Oberflächen, Schichten und Schichtsysteme zur Verbesserung der Lichteinkopplung in Silizium-Dünnschichtsolarzellen**
von M. Berginski (2008), XV, 171 Seiten
ISBN: 978-3-89336-516-6
6. **Politikszenerarien für den Klimaschutz IV – Szenarien bis 2030**
hrsg.von P. Markewitz, F. Chr. Matthes (2008), 376 Seiten
ISBN 978-3-89336-518-0
7. **Untersuchungen zum Verschmutzungsverhalten rheinischer Braunkohlen in Kohledampferzeugern**
von A. Schlüter (2008), 164 Seiten
ISBN 978-3-89336-524-1
8. **Inorganic Microporous Membranes for Gas Separation in Fossil Fuel Power Plants**
by G. van der Donk (2008), VI, 120 pages
ISBN: 978-3-89336-525-8
9. **Sinterung von Zirkoniumdioxid-Elektrolyten im Mehrlagenverbund der oxidkeramischen Brennstoffzelle (SOFC)**
von R. Mücke (2008), VI, 165 Seiten
ISBN: 978-3-89336-529-6
10. **Safety Considerations on Liquid Hydrogen**
by K. Verfondern (2008), VIII, 167 pages
ISBN: 978-3-89336-530-2

11. **Kerosinreformierung für Luftfahrtanwendungen**
von R. C. Samsun (2008), VII, 218 Seiten
ISBN: 978-3-89336-531-9

12. **Der 4. Deutsche Wasserstoff Congress 2008 – Tagungsband**
hrsg. von D. Stolten, B. Emonts, Th. Grube (2008), 269 Seiten
ISBN: 978-3-89336-533-3

13. **Organic matter in Late Devonian sediments as an indicator for environmental changes**
by M. Kloppisch (2008), XII, 188 pages
ISBN: 978-3-89336-534-0

14. **Entschwefelung von Mitteldestillaten für die Anwendung in mobilen Brennstoffzellen-Systemen**
von J. Latz (2008), XII, 215 Seiten
ISBN: 978-3-89336-535-7

15. **RED-IMPACT**
Impact of Partitioning, Transmutation and Waste Reduction Technologies on the Final Nuclear Waste Disposal
SYNTHESIS REPORT
ed. by W. von Lensa, R. Nabbi, M. Rossbach (2008), 178 pages
ISBN 978-3-89336-538-8

16. **Ferritic Steel Interconnectors and their Interactions with Ni Base Anodes in Solid Oxide Fuel Cells (SOFC)**
by J. H. Froitzheim (2008), 169 pages
ISBN: 978-3-89336-540-1

17. **Integrated Modelling of Nutrients in Selected River Basins of Turkey**
Results of a bilateral German-Turkish Research Project
project coord. M. Karpuzcu, F. Wendland (2008), XVI, 183 pages
ISBN: 978-3-89336-541-8

18. **Isotopengeochemische Studien zur klimatischen Ausprägung der Jüngeren Dryas in terrestrischen Archiven Eurasiens**
von J. Parplies (2008), XI, 155 Seiten, Anh.
ISBN: 978-3-89336-542-5

19. **Untersuchungen zur Klimavariabilität auf dem Tibetischen Plateau - Ein Beitrag auf der Basis stabiler Kohlenstoff- und Sauerstoffisotope in Jahrringen von Bäumen waldgrenznaher Standorte**
von J. Griessinger (2008), XIII, 172 Seiten
ISBN: 978-3-89336-544-9

20. **Neutron-Irradiation + Helium Hardening & Embrittlement Modeling of 9%Cr-Steels in an Engineering Perspective (HELENA)**
by R. Chaouadi (2008), VIII, 139 pages
ISBN: 978-3-89336-545-6
21. **in Bearbeitung**
22. **Verbundvorhaben APAWAGS (AOEV und Wassergenerierung) – Teilprojekt: Brennstoffreformierung – Schlussbericht**
von R. Peters, R. C. Samsun, J. Pasel, Z. Porš, D. Stolten (2008), VI, 106 Seiten
ISBN: 978-3-89336-547-0
23. **FREEVAL**
Evaluation of a Fire Radiative Power Product derived from Meteosat 8/9 and Identification of Operational User Needs
Final Report
project coord. M. Schultz, M. Wooster (2008), 139 pages
ISBN: 978-3-89336-549-4
24. **Untersuchungen zum Alkaliverhalten unter Oxycoal-Bedingungen**
von C. Weber (2008), VII, 143, XII Seiten
ISBN: 978-3-89336-551-7
25. **Grundlegende Untersuchungen zur Freisetzung von Spurstoffen, Heißgaschemie, Korrosionsbeständigkeit keramischer Werkstoffe und Alkalirückhaltung in der Druckkohlenstaubfeuerung**
von M. Müller (2008), 207 Seiten
ISBN: 978-3-89336-552-4
26. **Analytik von ozoninduzierten phenolischen Sekundärmetaboliten in *Nicotiana tabacum* L. cv Bel W3 mittels LC-MS**
von I. Koch (2008), III, V, 153 Seiten
ISBN 978-3-89336-553-1
27. **IEF-3 Report 2009. Grundlagenforschung für die Anwendung**
(2009), ca. 230 Seiten
ISBN: 978-3-89336-554-8
28. **Influence of Composition and Processing in the Oxidation Behavior of MCrAlY-Coatings for TBC Applications**
by J. Toscano (2009), 168 pages
ISBN: 978-3-89336-556-2
29. **Modellgestützte Analyse signifikanter Phosphorbelastungen in hessischen Oberflächengewässern aus diffusen und punktuellen Quellen**
von B. Tetzlaff (2009), 149 Seiten
ISBN: 978-3-89336-557-9

30. **Nickelreaktivlot / Oxidkeramik – Fügungen als elektrisch isolierende Dichtungskonzepte für Hochtemperatur-Brennstoffzellen-Stacks**
von S. Zügner (2009), 136 Seiten
ISBN: 978-3-89336-558-6

31. **Langzeitbeobachtung der Dosisbelastung der Bevölkerung in radioaktiv kontaminierten Gebieten Weißrusslands – Korma-Studie**
von H. Dederichs, J. Pillath, B. Heuel-Fabianek, P. Hill, R. Lennartz (2009),
Getr. Pag.
ISBN: 978-3-89336-532-3

32. **Herstellung von Hochtemperatur-Brennstoffzellen über physikalische Gasphasenabscheidung**
von N. Jordán Escalona (2009), 148 Seiten
ISBN: 978-3-89336-532-3

33. **Real-time Digital Control of Plasma Position and Shape on the TEXTOR Tokamak**
by M. Mitri (2009), IV, 128 Seiten
ISBN: 978-3-89336-567-8

34. **Freisetzung und Einbindung von Alkalimetallverbindungen in kohlebefeuchten Kombikraftwerken**
von M. Müller (2009), 155 Seiten
ISBN: 978-3-89336-568-5

35. **Kosten von Brennstoffzellensystemen auf Massenbasis in Abhängigkeit von der Absatzmenge**
von J. Werhahn (2009), 242 Seiten
ISBN: 978-3-89336-569-2

36. **Einfluss von Reoxidationszyklen auf die Betriebsfestigkeit von anodengestützten Festoxid-Brennstoffzellen**
von M. Ettler (2009), 138 Seiten
ISBN: 978-3-89336-570-8

37. **Großflächige Plasmaabscheidung von mikrokristallinem Silizium für mikromorphe Dünnschichtsolarmodule**
von T. Kilper (2009), XVII, 154 Seiten
ISBN: 978-3-89336-572-2

38. **Generalized detailed balance theory of solar cells**
von T. Kirchartz (2009), IV, 198 Seiten
ISBN: 978-3-89336-573-9

39. **The Influence of the Dynamic Ergodic Divertor on the Radial Electric Field at the Tokamak TEXTOR**
von J. W. Coenen (2009), xii, 122, XXVI Seiten
ISBN: 978-3-89336-574-6

40. **Sicherheitstechnik im Wandel Nuklearer Systeme**
von K. Nünighoff (2009), viii, 215 Seiten
ISBN: 978-3-89336-578-4
41. **Pulvermetallurgie hochporöser NiTi-Legierungen für Implantat- und Dämpfungsanwendungen**
von M. Köhl (2009), XVII, 199 Seiten
ISBN: 978-3-89336-580-7
42. **Einfluss der Bondcoatzusammensetzung und Herstellungsparameter auf die Lebensdauer von Wärmedämmschichten bei zyklischer Temperaturbelastung**
von M. Subanovic (2009), 188, VI Seiten
ISBN: 978-3-89336-582-1
43. **Oxygen Permeation and Thermo-Chemical Stability of Oxygen Permeation Membrane Materials for the Oxyfuel Process**
by A. J. Ellett (2009), 176 Seiten
ISBN: 978-3-89336-581-4
44. **Korrosion von polykristallinem Aluminiumoxid (PCA) durch Metalljodidschmelzen sowie deren Benetzungseigenschaften**
von S. C. Fischer (2009), 148 Seiten
ISBN: 978-3-89336-584-5
45. **IEF-3 Report 2009. Basic Research for Applications**
(2009), 217 Seiten
ISBN: 978-3-89336-585-2
46. **Verbundvorhaben ELBASYS (Elektrische Basissysteme in einem CFK-Rumpf) - Teilprojekt: Brennstoffzellenabgase zur Tankinertisierung - Schlussbericht**
von R. Peters, J. Latz, J. Pasel, R. C. Samsun, D. Stolten
(2009), xi, 202 Seiten
ISBN: 978-3-89336-587-6
47. **Aging of ¹⁴C-labeled Atrazine Residues in Soil: Location, Characterization and Biological Accessibility**
by N. D. Jablonowski (2009), IX, 104 Seiten
ISBN: 978-3-89336-588-3
48. **Entwicklung eines energetischen Sanierungsmodells für den europäischen Wohngebäudesektor unter dem Aspekt der Erstellung von Szenarien für Energie- und CO₂ - Einsparpotenziale bis 2030**
von P. Hansen (2009), XXII, 281 Seiten
ISBN: 978-3-89336-590-6

49. **Reduktion der Chromfreisetzung aus metallischen Interkonnektoren für Hochtemperaturbrennstoffzellen durch Schutzschichtsysteme**
von R. Trebbels (2009), iii, 135 Seiten
ISBN: 978-3-89336-591-3

50. **Bruchmechanische Untersuchung von Metall / Keramik-Verbundsystemen für die Anwendung in der Hochtemperaturbrennstoffzelle**
von B. Kuhn (2009), 118 Seiten
ISBN: 978-3-89336-592-0

51. **Wasserstoff-Emissionen und ihre Auswirkungen auf den arktischen Ozonverlust**
Risikoanalyse einer globalen Wasserstoffwirtschaft
von T. Feck (2009), 180 Seiten
ISBN: 978-3-89336-593-7

52. **Development of a new Online Method for Compound Specific Measurements of Organic Aerosols**
by T. Hohaus (2009), 156 Seiten
ISBN: 978-3-89336-596-8

53. **Entwicklung einer FPGA basierten Ansteuerungselektronik für Justageeinheiten im Michelson Interferometer**
von H. Nöldgen (2009), 121 Seiten
ISBN: 978-3-89336-599-9

54. **Observation – and model – based study of the extratropical UT/LS**
by A. Kunz (2010), xii, 120, xii Seiten
ISBN: 978-3-89336-603-3

55. **Herstellung polykristalliner Szintillatoren für die Positronen-Emissions-Tomographie (PET)**
von S. K. Karim (2010), VIII, 154 Seiten
ISBN: 978-3-89336-610-1

56. **Kombination eines Gebäudekondensators mit H₂-Rekombinatorelementen in Leichtwasserreaktoren**
von S. Kelm (2010), vii, 119 Seiten
ISBN: 978-3-89336-611-8



Energie & Umwelt / Energy & Environment
Band / Volume 56
ISBN 978-3-89336-611-8